

N° d'ordre 79

THESE
PRESENTEE A
L'UNIVERSITE DE BRETAGNE SUD

Par Nadine ALLANIC

POUR L'OBTENTION DU TITRE DE

DOCTEUR

EN SCIENCES POUR L'INGENIEUR

**Optimisation sous contraintes d'une opération de séchage combinant
la convection et les technologies rayonnantes infrarouges
- Application à un polymère en solution aqueuse -**

Soutenue le 11 Décembre 2006

Devant la commission d'examen formée de :

B. GUERRIER, Directrice de recherche
W. JOMAA, Professeur d'Université
P. GLOUANNEC, Professeur d'Université
M. HAVET, Maître de conférences
P. SALAGNAC, Maître de conférences
Y. SCUDELLER, Professeur d'Université

FAST-CNRS, Orsay
Université de Bordeaux I
Université de Bretagne Sud
ENITIAA, Nantes
Université de Bretagne Sud
Ecole polytechnique de
l'Université de Nantes

Rapporteur
Rapporteur
Examineur, Directeur de thèse
Examineur
Examineur, Co-encadrant
Examineur, Président du jury

Je remercie

Tout d'abord Patrick Glouannec,
pour avoir dirigé ce travail avec patience, pour sa disponibilité et ses encouragements.

Avec grand plaisir Patrick Salagnac,
pour avoir encadré cette thèse avec enthousiasme, pour sa confiance et son aide précieuse.

*Qu'ils trouvent tous deux en ces quelques mots
l'expression de ma plus profonde gratitude.*

Profondément Béatrice Guerrier et Wahbi Jomaa,
pour m'avoir fait l'honneur d'être mes rapporteurs, pour leur soutien et leurs conseils avisés.

Sincèrement Yves Scudeller,
pour l'attention qu'il a portée à cette étude et pour avoir présidé le jury.

Egalement Michel Havet,
pour l'intérêt et les remarques constructives qu'il a portés sur ce travail.

*Que l'ensemble des membres du jury trouve en ces quelques mots
l'assurance de toute ma considération.*

Amicalement Hervé Guezenoc et Hervé Noël,

Vivement Jean Costa, Michel Dumons et Françoise Peresse,
pour leur aide sur la partie expérimentale de ce travail.

Beaucoup Jean-François Feller et Yves Grohens,
pour m'avoir fait profiter de leurs connaissances dans le domaine des polymères.

Evidemment Patrick Dutournié,
pour son aide sur la partie numérique de ce travail, ses conseils et ses encouragements permanents.

Chaleureusement Guillaume Droval,

Grandement Pascal Le Bideau,
pour tous ces bons moments partagés, pour leur aide et leur soutien quotidien.

*Qu'ils trouvent tous deux en ces quelques mots l'expression de ma plus sincère
reconnaissance et tous mes vœux de bonheur dans ce métier.*

Tout simplement les membres du LET2E,

En particulier M. Carin, P. Chauvelon, P. Lemasson, T. Loulou et C. Tanguy,
pour leur accueil et l'attention qu'ils m'ont accordée

Tendrement ma famille,
pour la curiosité dont ils ont fait part face à ce travail, pour leur imperturbable confiance et surtout pour avoir pris soin de ma Mélissa.

Enfin, de toutes ces façons à la fois, je dis merci ...

A une grande pianiste, Micheline France Rio
A celui qui est si cher à mon cœur, Olivier Cardin

Sommaire

SOMMAIRE	7
NOMENCLATURE.....	9
INTRODUCTION	11
CHAPITRE 1 CONTEXTE DE L'ETUDE.....	13
1.1 Généralités sur le séchage des milieux fortement déformables	14
1.2.1 Transferts de masse	19
1.2.2 Transferts thermiques	20
1.2.3 Conditions à l'interface air-produit.....	21
1.3.1 Approches théoriques	23
1.3.2 Utilisation de la solution analytique de l'équation de Fick	24
1.3.3 Identification par méthode inverse à partir d'un modèle.....	27
CHAPITRE 2 ETUDE EXPERIMENTALE	37
2.1 Caractérisation du produit à sécher et de la boîte de Pétri.....	37
2.1.1 Description du produit	37
2.1.2 Propriétés physiques	40
2.1.3 Isothermes de désorption	43
2.1.4 Cristallinité.....	45
2.1.5 Propriétés de la boîte de Pétri.....	46
2.2 Dispositif expérimental	47
2.3 Essais en convection	51
2.3.1 Présentation d'un essai en convection	51
2.3.2 Influence des conditions aérauliques	53
2.3.3 Comparaison de différentes compositions	54
2.4 Essais combinés convection-rayonnement.....	55
2.4.1 Essai avec un éclairage infrarouge constant.....	56
2.4.2 Essai avec un éclairage infrarouge variable	57
2.5 Comparaison des cinétiques en convection et en infrarouge.....	59
2.6 Estimation de paramètres à partir d'essais en convection	62

2.7 Propriétés radiatives	65
2.8 Conclusion.....	69
CHAPITRE 3 MODELISATION ET SIMULATION.....	71
3.1 Equations relatives aux transferts de masse et de chaleur	71
3.1.1 Bilan massique	73
3.1.2 Bilan thermique.....	76
3.2 Résolution numérique	79
3.3 Essais de simulation	80
3.3.1 Calcul des fractions volumiques et du champ de température.....	80
3.3.2 Comparaison approches « volumique et barycentrique » dans le cas d’une température homogène du produit	84
3.4 Estimation du coefficient de diffusion	90
3.4.1 Description de la méthode.....	91
3.4.2 Analyse des sensibilités et approche stochastique	92
3.4.3 Tests numériques.....	94
3.4.4 Identification des paramètres.....	96
3.5 Confrontation simulation - expérience	98
3.6 Etude de sensibilités des paramètres du modèle.....	101
3.6.1 Coefficient de convection	101
3.6.2 Coefficient d’absorption du rayonnement infrarouge	102
3.7 Conclusion.....	104
CHAPITRE 4 OPTIMISATION DU SECHAGE	107
4.1 Approche par régulation.....	108
4.2 Commande optimale	111
4.2.1 Minimisation de la consommation d’énergie	113
4.2.2 Prise en compte de la qualité du produit	116
4.2.3 Couplage consommation énergétique et qualité du produit final.....	121
4.3 Conclusion.....	123
CONCLUSION	125
REFERENCES	127
ANNEXE I DISCRETISATION DES EQUATIONS	135
ANNEXE II ETAT DE SURFACE DU PRODUIT FINAL	141

Nomenclature

Alphabet Latin

a_w	activité de l'eau
C, K, W_m	paramètres du modèle de GAB
C_p	chaleur massique à pression constante ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)
D	coefficient de diffusion ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
D_0, a	paramètre du coefficient de diffusion ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
e	épaisseur (m)
E_a	énergie d'activation (J.mol^{-1})
f	fraction volumique
F_m	flux masse évaporé ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$)
H_{air}	humidité de l'air (%)
h_c	coefficient d'échange de chaleur par convection ($\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$)
J_D	densité de flux de matière ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$)
J_Q	densité de flux thermique (W.m^{-2})
k	coefficient d'extinction (m^{-1})
k_m	coefficient de transfert de masse (m.s^{-1})
L_e	nombre de Lewis
L_v	chaleur latente de vaporisation de l'eau (J.kg^{-1})
m	masse (kg)
P	densité de flux (W.m^{-2})
P_e	nombre de Peclet
P_t	pression atmosphérique (Pa)
P_v	pression partielle de vapeur d'eau (Pa)
P_r	nombre de Prandlt
q_r	flux de rayonnement GLO (W.m^{-2})
R	constante des gaz parfait ($\text{J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$)
S	surface (m^2)
S_c	nombre de Schmidt
t	temps (s)
T	température ($^{\circ}\text{C}$)
T_{air}	température d'air ($^{\circ}\text{C}$)

T_g	température de transition vitreuse ($^{\circ}\text{C}$)
U	tension (V)
V_m	volume massique ($\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$)
v	vitesse ($\text{m}.\text{s}^{-1}$)
w	fraction massique
x	fraction molaire
X	teneur en eau en base sèche ($\text{kg}.\text{kg}^{-1}$)
z	abscisse (m)

Alphabet Grec

α	coefficient d'absorption
ε	émissivité
ξ	coordonnée d'espace adimensionnée
κ	coefficient d'extinction (m^{-1})
γ	coefficient d'activation ou de pondération
ΔH	enthalpie de fusion ($\text{J}.\text{g}^{-1}$)
ΔH_{∞}	enthalpie de fusion du monocristal ($\text{J}.\text{g}^{-1}$)
ϕ	puissance volumique ($\text{W}.\text{m}^{-3}$)
φ	densité de flux de chaleur ($\text{W}.\text{m}^{-2}$)
η	efficacité énergétique ($\text{kg}.\text{kWh}^{-1}$)
λ	conductivité thermique ($\text{W}.\text{m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)
ρ	masse volumique ($\text{kg}.\text{m}^{-3}$)
τ	coefficient de transmission, taux de cristallinité
σ	constante de Stephan-Boltzamm ($5,67 \cdot 10^{-8} \text{ W}.\text{m}^{-2}.\text{K}^{-4}$)
ψ	coefficient de retrait linéaire
ζ	coordonnée d'espace (m)

Indices

b	boîte de Pétri
IR	infrarouge
A	solvant
B	soluté
t	transmis
i	initial
f	final
$surf$	surface
$cons$	consigne

Exposants

0	intrinsèque
$*$	adimensionné

Introduction

Le séchage de polymère est un thème d'actualité. En effet, le respect de nouvelles normes environnementales tend à interdire l'utilisation de solvants organiques. Les polymères à base aqueuse permettent de répondre à cet objectif. Cependant, les conditions opératoires de séchage sont totalement différentes du fait des énergies plus importantes mises en jeu pour ce type de produit. De ce point de vue, les technologies rayonnantes s'avèrent une solution intéressante. Elles permettent, en effet, un transfert d'énergie direct au produit à sécher et les densités de puissance appliquées au produit sont importantes. L'emploi de ce mode de chauffage peut modifier profondément les cinétiques de séchage habituelles et nécessite de bien appréhender les mécanismes thermiques et hydriques mis en jeu afin de ne pas détériorer le produit.

Dans cette étude, le produit étudié est une solution aqueuse de polymère contenant un plastifiant et des additifs. Contrairement au système solvant/polymère déjà étudié dans la littérature, il a une teneur en eau importante et une épaisseur initiale de l'ordre du millimètre. Le produit sec est destiné à des analyses biochimiques. Nous nous intéressons en particulier au séchage combinant des apports par convection avec des apports par rayonnements électromagnétiques de type infrarouge. Les études expérimentales et numériques qui sont menées ont pour but de développer une méthodologie permettant de maîtriser le couplage "Procédé-Produit" afin de minimiser le temps de séchage, le coût énergétique et améliorer la qualité du produit final.

La première partie de ce mémoire situe cette étude dans le contexte général du séchage des milieux fortement déformables. Les équations relatives aux transferts de masse et de chaleur sont présentées. Le retrait de la matière y est pris en compte. Une étude bibliographique sur l'estimation du coefficient de diffusion d'un système polymère/solvant est menée. Le principe d'une commande optimale d'un procédé de séchage est ensuite décrit.

Le chapitre 2 est consacré à la détermination des principales propriétés du produit et à la présentation de différentes expérimentations. Des essais de séchage montrent le comportement thermo-hydrique du produit en présence de sollicitations de types convectifs et infrarouges.

Le chapitre 3 concerne la modélisation et la simulation des phénomènes de transfert de chaleur et de masse du comportement thermo-hydrique du produit lors

du séchage. Différentes approches mathématiques sont envisagées pour s'affranchir des difficultés de résolution liées à la déformation du produit. Un code de calcul des champs de teneur en eau et de température est développé. Des résultats de simulations confortés par les expérimentations effectuées au chapitre 2 montrent que les gradients de température dans le produit sont négligeables. Un pseudo-coefficient de diffusion est estimé par méthode inverse à l'aide des cinétiques de séchage en convection puis plusieurs expérimentations sont utilisées pour valider le modèle développé.

Dans le chapitre 4, une méthode d'optimisation du procédé de séchage est développée. Une commande optimale est exploitée afin de déterminer la sollicitation infrarouge correspondant à un compromis entre la réduction du temps de séchage et le coût énergétique tout en respectant des contraintes sur la teneur en eau et la température du produit.

Chapitre 1

Contexte de l'étude

L'objectif de cette étude est de sécher un polymère en solution aqueuse en un minimum de temps tout en respectant des contraintes sur le mode opératoire et sur la qualité du produit final.

Différents procédés thermiques sont proposés dans la littérature pour sécher les produits à base de polymère. Geipel et Stephan [1] présentent une étude expérimentale sur le séchage convectif de peintures automobiles. Lamaison [2,3] et Blanc [4] se sont intéressées au séchage par infrarouge de telles peintures. Le Person [5,6], dans une étude d'enductions pharmaceutiques, compare différents modes de séchage : convectif, conductif, infrarouges courts et moyens. Il montre que le séchage convectif n'est pas approprié car il favorise l'apparition d'une peau en surface de l'enduction. Il préconise, pour des produits semi-transparents de faibles épaisseurs, l'infrarouge court qui permet un transfert d'énergie direct et au cœur du matériau. Zagrouba [7], quant à lui, propose de sécher des gels à partir d'un procédé mixte convection/micro-onde. Les micro-ondes permettent un transfert d'énergie important au cœur du produit.

Les technologies rayonnantes qui permettent un transfert direct d'énergie sont donc de plus en plus utilisées. Dans cette étude, un séchage combinant des apports d'énergie par convection et par infrarouge est exploité.

Après avoir décrit les grandeurs à prendre en compte au niveau du produit, les principaux phénomènes physiques intervenant lors du séchage des milieux très fortement déformables sont décrits. Les équations liées au bilan de masse et au bilan thermique sont présentées et tiennent compte de la déformation du produit. Par contre, les équations de mouvement liées au comportement mécanique du matériau ne sont pas abordées.

L'un des paramètres prépondérants de l'étude est le coefficient de diffusion massique. Il est aussi l'un des plus difficile à appréhender notamment parce qu'il varie de plusieurs ordres de grandeurs au cours du séchage. Les différentes méthodes de détermination du coefficient de diffusion mutuel d'un système solvant/polymère sont alors discutées.

Enfin, l'objectif final étant de développer une méthode de calcul de l'éclairement infrarouge permettant d'obtenir un compromis entre temps de séchage, consommation

énergétique et qualité finale du produit, le principe d'une commande optimale est décrit à travers plusieurs exemples.

1.1 Généralités sur le séchage des milieux fortement déformables

Lors d'une opération de séchage, différents types de comportement peuvent être distingués [8] ce qui nous permet de différencier trois catégories de matériaux :

- **Le matériau possède une structure rigide**, ce qui implique que l'eau évacuée est remplacée par de l'air (pas de déformation apparente). C'est le cas des milieux poreux tels que le béton, la brique,... Au sein de ce type de milieux, les transferts de masse s'effectuent par capillarité et par diffusion et font intervenir les gradients de pression, de concentration et de température.

- **Le matériau est fortement déformable** et se comporte comme un milieu poreux saturé (pas de structure poreuse apparente). L'élimination de l'eau se traduit uniquement par un retrait de la matière. L'évaporation du solvant (il s'agit souvent d'eau) n'a lieu qu'en surface et la diffusion de matière au sein du produit se fait en phase liquide. Dans ce cas, les transferts de masse sont régis par la diffusion et font intervenir deux gradients moteurs : la concentration et la température [9]. Les produits à base de polymère de type gels, peintures, produits pharmaceutiques,... font généralement partie de cette catégorie.

- De nombreux produits comme le bois, les produits agro-alimentaires, les argiles, ont **un comportement intermédiaire**. La diminution du volume de liquide n'est pas compensée par la contraction de la matrice rigide, ce qui peut entraîner l'apparition d'un réseau poreux.

Les produits à base de polymère subissent au cours de leur séchage un retrait très important. Bien qu'il soit possible qu'une phase gazeuse apparaisse en fin de séchage [8], celle-ci est couramment négligée.

Pour les solutions polymères contenant un ou plusieurs solvants organiques, les auteurs utilisent différentes grandeurs physiques pour exprimer la conservation de la masse. Nishimura et al. [10] en 1983 expriment le transfert de masse en introduisant la fraction massique de solvant. Guerrier et al. [11], tout comme Yoshida et Miyashita [12] préfèrent utiliser la densité du solvant dans leurs équations. Vinjamur et Cairncross [13], qui ont développé un modèle pour les solutions polymères ayant un comportement non-fickien, introduisent quant à eux la concentration de solvant par unité de volume du polymère. Lei et al. [14], qui étudient les contraintes mécaniques induites par le retrait de matière utilisent les flux molaires du solvant et du polymère. Ces notations et expressions multiples rendent parfois difficile le lien entre les différentes approches utilisées. Dans le cas où le solvant à éliminer est de l'eau, la grandeur physique la plus souvent utilisée pour définir la quantité d'eau est la teneur en eau en base sèche (X) qui s'exprime par :

$$X = \frac{m_A}{m_B} \quad \mathbf{1-1}$$

où m_A et m_B sont respectivement les masses du solvant (A) et du soluté (B).

Elle peut être reliée aux fractions massiques (w) des constituants :

$$w_A = \frac{X}{I + X} \quad \text{et} \quad w_B = \frac{I}{I + X} \quad \mathbf{1-2}$$

ainsi qu'à leurs fractions volumiques (f) :

$$f_A = \frac{X\rho_B^0}{\rho_A^0 + X\rho_B^0} \quad \text{et} \quad f_B = \frac{\rho_A^0}{\rho_A^0 + X\rho_B^0} \quad \mathbf{1-3}$$

L'évolution de la teneur en eau au sein du produit est liée au flux masse évaporé (F_m) qui est classiquement décrit par la théorie du film [15] :

$$F_m = k_m \left(\frac{P_t M_v}{RT_{film}} \right) \ln \left(\frac{P_t - P_v(T)}{P_t - a_w P_{v,sat}(T)} \right) \quad \text{avec} \quad T_{film} = \frac{T_{surf} + T_{air}}{2} \quad \mathbf{1-4}$$

où k_m est le coefficient de transfert de masse et P_t , P_v et $P_{v,sat}$ sont respectivement la pression totale de l'air, la pression partielle de vapeur d'eau dans l'air et la pression de vapeur saturante à la surface du film.

Le coefficient de transfert de masse (k_m) est lié au coefficient de convection (h_c) par [15] :

$$\frac{h_c}{k_m} = \rho C_p L_e^{2/3} \quad \text{avec} \quad L_e = \left(\frac{S_c}{P_r} \right) \quad \mathbf{1-5}$$

où S_c est le nombre de Schmidt et P_r le nombre de Prandtl.

Dans le cadre de l'hypothèse de Lewis couramment utilisée [16, 17], $L_e = 1$.

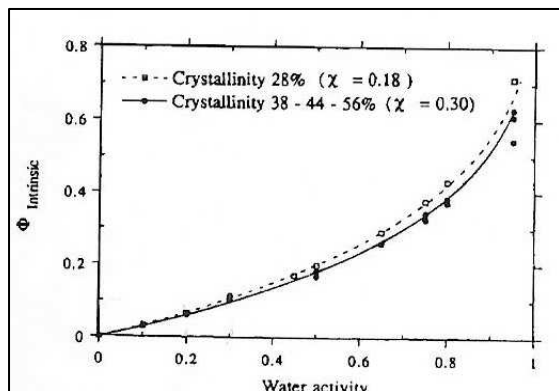
L'activité (a_w) traduit l'équilibre de la pression partielle de vapeur d'eau à la surface du produit.

$$a_w = \frac{P_v}{P_{v,sat}} \quad \mathbf{1-6}$$

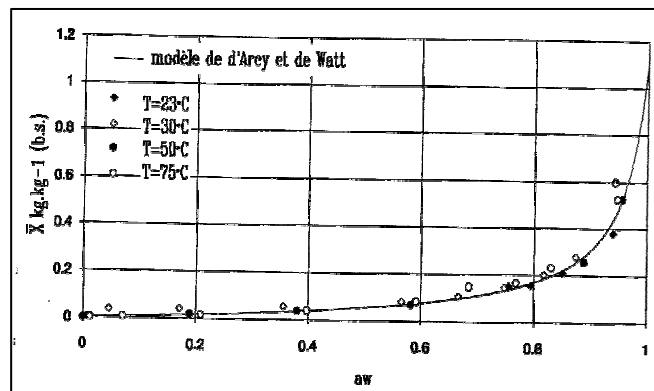
Elle est fonction de la teneur en eau et de la température et peut être obtenue expérimentalement à l'aide des isothermes de sorption (prise d'eau) ou de désorption (perte d'eau).

La Figure 1-1 donne plusieurs exemples d'isothermes de sorption et de désorption de polymère en solution aqueuse. Tout d'abord, Navarri [18, 19] qui caractérise les isothermes d'une colle d'alcool polyvinylique et Aregba [20] celles d'une gélatine et d'une cellulose montrent en réalisant les isothermes de désorption à différentes températures comprises entre 20 et 70°C, que l'activité varie peu avec la température. Perrin [21] s'intéresse aux isothermes de sorption d'une solution aqueuse d'alcool polyvinylique. Il constate, tout comme Navarri qui travaille sur un produit

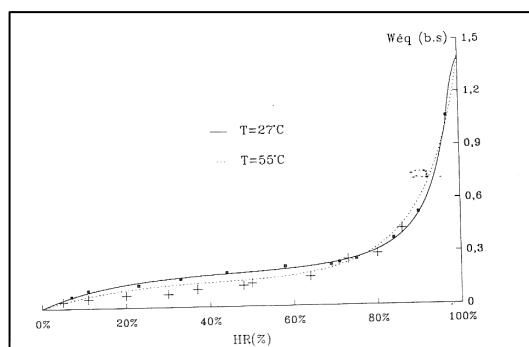
similaire, que l'activité commence à chuter pour une teneur en eau proche de 1 kg.kg^{-1} (ce qui correspond à une fraction volumique d'eau $f_A = 0,56$ en considérant une masse volumique de 1300 kg.m^{-3} pour l'alcool polyvinylique [22]). Par contre, pour une teneur en eau de 0,2, Navarri obtient une activité de 0,8 alors que Perrin détermine pour la même valeur ($f_A = 0,21$) une activité proche de 0,5. Les différentes études présentées montrent clairement que l'activité est une caractéristique propre de chaque produit.



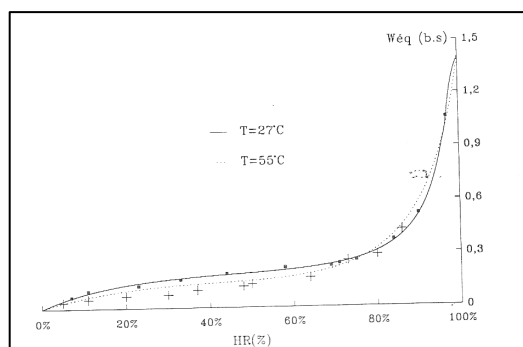
a) Fraction volumique d'eau en équilibre avec plusieurs alcools polyvinyliques en fonction de l'activité de l'eau (Perrin, 1996)



b) Isothermes de désorption d'une colle à base d'alcool polyvinylique (Navarri, 1992)



d) Evolution des isothermes de désorption du cellulose purifié (Aregba, 1990)



e) Evolution des isothermes de désorption d'une gélatine (Aregba, 1990)

Figure 1-1 : Exemples d'isothermes de sorption/désorption de systèmes polymère/solvant

Pour décrire l'évolution de l'activité en fonction de l'humidité, de nombreux modèles existent dans la littérature (Langmuir, BET, Henderson,...) [23]. Nombre d'entre eux sont restreints à une plage d'humidité et ne tiennent pas compte de l'influence de la température. Parmi ceux-ci, citons tout d'abord, le modèle de Guggenheim-Anderson-de Boer (GAB) donné par :

$$X = \frac{W_m C K a_w}{(1 - K a_w) (1 - K a_w + C K a_w)} \quad 1-7$$

Ce modèle nécessite l'estimation de trois paramètres (C , K et W_m). Blanc et al. [4], qui étudient le séchage et la réticulation de peintures de type époxy-amine, déterminent les cinétiques de sorption à 25°C pour identifier les paramètres du

modèle de GAB. Chettaf [24] a montré, qu'en dessous de 55°C, la température a peu d'influence sur l'activité de son produit et choisit lui aussi de prendre des paramètres constants. A l'inverse, Mintzlaff [25] prend en compte l'influence de la température sur l'activité et exprime les paramètres du modèle de GAB par une loi d'Arrhenius.

Chettaf [24] et Aregba [20] proposent d'exprimer les cinétiques de désorption des polymères par le modèle de d'Arcy et Watt qui fait intervenir cinq paramètres. Aregba précise que les coefficients n'ont pas de sens physique et considère qu'ils sont indépendants de la température dans son étude sur le séchage de gel et de pâte.

Contrairement aux modèles précédemment décrits, la relation de Flory-Huggins (Eq. 1-8) fait intervenir un paramètre nommé paramètre d'interaction χ ayant un sens physique. En effet, il exprime l'affinité entre le solvant et le polymère (Saby-Dubreuil). Lorsqu'ils sont totalement miscibles χ est inférieur à 0,5. Au-delà de cette valeur, deux phases existent, l'une concentrée en solvant et l'autre en polymère.

$$a_w(f_l) = \frac{P_v}{P_{vsat}} f_l \exp(1 - f_l + \chi(1 - f_l)^2) \quad 1-8$$

Le paramètre de Flory-Huggins a été déterminé expérimentalement pour un grand nombre de couples solvant/polymère. A défaut d'être connu, Guerrier et al. [11] qui travaillent sur le séchage d'un vernis industriel expliquent, au vu des cinétiques de séchage obtenues, qu'il peut être pris égal à 0. Mais généralement, il est identifié à partir des isothermes de désorption. Mintzlaff [25] obtient un bon accord entre ses résultats expérimentaux et la relation de Flory-Huggins en exprimant le paramètre d'interaction comme une fonction exponentielle de la fraction volumique de polymère. Saby-Dubreuil [26,27], qui étudie le couplage entre la diffusion et la transition vitreuse de copolymères, considère que le paramètre d'interaction doit être indépendant de la concentration mais peut varier de façon inversement proportionnelle à la température. Elle constate que pour les faibles concentrations en solvant, il existe un écart par rapport à la relation de Flory-Huggins, qui peut être attribué au caractère vitreux de son mélange. Perrin [21], qui étudie des membranes à base d'alcool polyvinylique, utilise lui aussi cette relation. Il montre alors que les cinétiques de sorption sont correctement représentées par ce modèle mais que le paramètre de Flory-Huggins peut varier avec le taux de cristallinité du polymère. Il distingue deux domaines : une faible cristallinité (inférieure à 28%) où $\chi = 0,18$ et un domaine supérieur où χ est unique et vaut 0,3.

Les principales grandeurs d'un procédé de séchage ayant été définies, les équations représentatives des phénomènes mis en jeu sont maintenant décrites.

1.2 Modèle diffusif : transferts de masse et de chaleur

Dans la littérature, différentes expressions sont données pour exprimer le bilan massique, le bilan énergétique et la déformation des matériaux.

- **Le bilan massique** fait classiquement intervenir un terme diffusif et un terme convectif lié au retrait de la matière. Katekawa [28] qui compare les différents modèles développés pour décrire le séchage de milieux déformables montre que

certain auteurs considèrent un transfert uniquement en phase liquide alors que d'autres différencient l'eau libre de l'eau liée et tiennent compte d'un transport de matière en phase gazeuse [28]. Le terme diffusif est classiquement exprimé comme une fonction du gradient de teneur en eau ou de la concentration (équation de Fick), mais il est parfois décrit par la loi de Darcy. Le terme diffusif fait alors intervenir le gradient de pression. Il peut aussi être fonction du gradient de température et tenir compte des propriétés mécaniques du produit tels que le module d'Young ou la viscosité.

- **Dans le bilan énergétique interviennent** les échanges par conduction et le flux de chaleur induit par la diffusion massique par l'intermédiaire du gradient de concentration. Katekawa [28] précise que certains auteurs tiennent compte du flux de chaleur induit par le gradient de pression ou de potentiels chimiques. Un terme supplémentaire intervient lorsqu'il y a des apports volumiques de chaleur. Dans la littérature, les produits à base de polymère ont classiquement une faible épaisseur (de l'ordre de la centaine de microns) et sont souvent déposés sur des supports métalliques [18, 13, 11]. L'hypothèse d'une température de produit et de substrat uniforme est dans ce cas classiquement retenue. Lamaison [3], cependant, tient compte du gradient de température au sein de son film. Enfin, il est à noter que de nombreuses études de séchage notamment celles réalisées à l'aide d'analyse gravimétrique sont dites menées en isotherme. C'est le cas de Wong et al. [22,29] qui pour prédire l'influence de la formation d'une couche vitreuse à la surface de solutions polymères ont choisi de considérer un système isotherme.

- **Les phénomènes de retrait** peuvent aussi être décrits par différentes approches. Lorsque la diminution de volume du produit correspond au volume de solvant évaporé, le retrait de matière est dit idéal. De nombreux auteurs ont retenu cette hypothèse. Le Person [5] explique dans son étude des enductions pharmaceutiques (patches) que l'évaporation provoque le retrait idéal du réseau macromoléculaire expulsant ainsi l'eau vers la surface libre. Navarri [18] constate que le volume massique de son enduction d'alcool polyvinylique est une fonction linéaire de la teneur en eau et suppose donc qu'il en est de même pour le retrait. Il développe alors un modèle diffusif permettant de déterminer le comportement thermohydrigue d'un milieu diphasique. Il formule plusieurs hypothèses (le transfert de masse est unidirectionnel, le produit a une température homogène,...) qui sont confirmées par la confrontation des résultats expérimentaux et des simulations. Chettaf [24] et Dufour [30] font eux aussi l'hypothèse d'un retrait idéal et présentent un modèle de séchage analogue. Dans le cas de transferts de masse unidirectionnel, la diminution de l'épaisseur lors d'un retrait idéal s'exprime comme une fonction linéaire de la teneur en eau par l'intermédiaire d'un coefficient de retrait (Ψ) [4, 18] :

$$e = e_s \left(1 + \Psi X_m \right) \quad \text{avec } e_s \text{ l'épaisseur du produit sec.} \quad \mathbf{1-9}$$

Au retrait volumique lié à la perte d'eau peut s'ajouter une déformation de la matrice solide (dilatation ou compression) due au champ de contraintes. Selon les propriétés mécaniques du matériau, le retrait peut aussi être caractérisé d'élastique ou de viscoélastique. Jomaa [31,32] étudie le séchage d'un gel à base de cellulose assimilé à un milieu diphasique. Après avoir montré l'influence de la vitesse de retrait

sur les transferts de masse et de chaleur, il décrit le comportement en déformation de ce matériau à l'aide d'un modèle élastique. La rigidification de la surface se traduit par une discontinuité du module d'Young. L'évolution difficilement compréhensible du coefficient de Poisson montre les limites d'un modèle élastique notamment en fin de séchage. Jomaa [32] considère que le comportement rhéologique n'a pas d'incidence sur les transports de masse et de chaleur. Cette hypothèse est raisonnable pour les matériaux peu déformables mais difficilement acceptable pour des produits tels que des gels. Bogdanis [8] développe alors un modèle basé sur la physique des milieux continus prenant en compte ce couplage et permettant de prédire l'évolution des contraintes au sein de matériaux élastiques ou viscoélastiques au cours d'un séchage convectif.

Dans le travail présenté ci-dessous, le comportement des milieux diphasiques ayant un retrait de matière supposé idéal est décrit par un modèle purement diffusif [33]. En d'autres termes, la diffusion massique au sein du produit se fait uniquement en phase liquide et l'évaporation de l'eau n'a lieu qu'en surface. Le comportement thermohydrique du matériau est décrit par les lois de conservation de la masse et de l'énergie complétées par les lois de diffusion (Fick et Fourier). Les vitesses de déplacement des deux constituants sont prises en compte dans les équations de bilan.

1.2.1 Transferts de masse

Les équations de conservation de la masse pour chacun des constituants s'écrivent [9, 34] :

$$\frac{\partial \rho_A}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho_A \vec{v}_A) = 0 \quad \text{1-10}$$

$$\frac{\partial \rho_B}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho_B \vec{v}_B) = 0 \quad \text{1-11}$$

avec ρ_A, ρ_B les masses volumiques du solvant et du soluté rapportées au volume élémentaire représentatif et \vec{v}_A, \vec{v}_B les vitesses du solvant et du soluté.

Les termes de transport $\rho_A \vec{v}_A$ et $\rho_B \vec{v}_B$ peuvent se décomposer en un terme diffusif (\vec{J}_{D_A} et \vec{J}_{D_B}) et en un terme convectif ($\rho_A \vec{v}$ et $\rho_B \vec{v}$) :

$$\rho_A \vec{v}_A = \vec{J}_{D_A} + \rho_A \vec{v} \quad \text{1-12}$$

$$\text{et} \quad \rho_B \vec{v}_B = \vec{J}_{D_B} + \rho_B \vec{v} \quad \text{1-13}$$

En exprimant le flux massique de diffusion par l'équation de Fick,

$$\vec{J}_{D_A} = -D_{AB} \vec{\nabla} \rho_A \quad \text{et} \quad \vec{J}_{D_B} = -D_{AB} \vec{\nabla} \rho_B \quad \text{1-14}$$

les équations de conservation 1-12 et 1-13 deviennent :

$$\frac{\partial \rho_A}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho_A \vec{v}) = \vec{\nabla} \cdot (D_{AB} \vec{\nabla} \rho_A) \quad \mathbf{1-15}$$

$$\frac{\partial \rho_B}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho_B \vec{v}) = \vec{\nabla} \cdot (D_{AB} \vec{\nabla} \rho_B) \quad \mathbf{1-16}$$

Vitesse de référence

La vitesse de référence du système est une moyenne pondérée des vitesses de déplacement du solvant (\vec{v}_A) et du soluté (\vec{v}_B).

Les différentes vitesses liées au transfert de masse sont schématisées sur la Figure 1-2. Les vitesses de diffusion respectivement du solvant et du soluté s'expriment par $\vec{v}_A - \vec{v}$ et $\vec{v}_B - \vec{v}$.

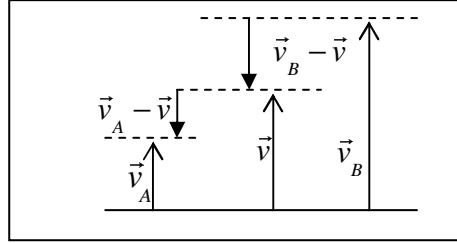


Figure 1-2 : Les différentes vitesses du transfert de masse

D'une façon générale, la vitesse de référence s'exprime par :

$$\vec{v} = \sum_i \gamma_i \vec{v}_i \quad \text{avec} \quad \sum_i \gamma_i = 1 \quad \mathbf{1-17}$$

où \vec{v}_i est la vitesse de déplacement de la phase i .

Selon le mélange étudié, les coefficients de pondération (γ_i) peuvent être respectivement les concentrations massiques, les concentrations molaires ou les fractions volumiques des constituants [3].

De nombreux auteurs font le choix d'une vitesse de référence barycentrique ce qui impose que :

$$\rho \vec{v} = \sum_i \rho_i \vec{v}_i \quad \text{avec} \quad \rho = \sum_i \rho_i \quad \mathbf{1-18}$$

Souvent le choix de cette vitesse de référence s'explique par l'approche mathématique choisie pour résoudre les différentes équations mises en jeu.

1.2.2 Transferts thermiques

Au sein du produit, les transferts de chaleur sont régis par l'équation de la chaleur :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\vec{J}_Q) + \vec{\nabla} \cdot (\rho_A \vec{v}_A C_{p,A} T) + \vec{\nabla} \cdot (\rho_B \vec{v}_B C_{p,B} T) = \phi \quad 1-19$$

Dans cette équation apparaît un terme lié à l'accumulation, à la diffusion du solvant et du soluté [3, 7] et les apports volumiques ϕ .

En exprimant le flux thermique de diffusion \vec{J}_Q par la loi de Fourier,

$$\vec{J}_Q = -\lambda \vec{\nabla} T \quad 1-20$$

l'équation de conservation 1-19 devient :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (\lambda \vec{\nabla} T) - \vec{\nabla} \cdot (\rho_A \vec{v}_A C_{p,A} T) - \vec{\nabla} \cdot (\rho_B \vec{v}_B C_{p,B} T) + \phi \quad 1-21$$

Apport de type infrarouge

Dans le cadre d'un apport infrarouge, les propriétés radiatives du produit interviennent dans la détermination du terme source. Au cours du séchage, l'absorptivité qui est fonction de la teneur en solvant et de l'épaisseur du produit évolue. Blanc [4] mesure le flux transmis à travers une plaque de verre recouverte ou non de son film de peinture et déduit de cette expérimentation l'absorptivité de son film de peinture au cours du séchage. Lamaison [3] a mis au point une technique originale permettant de déduire le coefficient d'absorption. Elle consiste à analyser la réponse thermique du produit soumis à une brusque interruption de l'éclairement infrarouge. La brusque pente observée dans la loi d'échauffement permet, en négligeant les pertes de chaleur avec l'environnement et par conduction sur un court instant, de remonter à la valeur de l'absorptivité. A la surface du produit, intervient aussi le coefficient réflexion. Il peut être exprimé par les relations de Fresnel [10]. Sa variation au cours du séchage est donc liée à celle de l'indice optique du produit (et donc par conséquent à la teneur en eau) en surface. La puissance absorbée au sein du produit est classiquement exprimée par la loi de Lambert – Beer [35].

1.2.3 Conditions à l'interface air-produit

Les conditions aux limites en surface du produit associées au système d'équations précédemment décrit sont déduites des considérations suivantes.

Bilan masse

A la surface, la continuité du flux masse impose que la quantité d'eau évaporée en surface est égale à la somme du flux de diffusion massique et au flux de transport induit par le retrait de matière.

$$F_m \left(1 - \frac{\rho_A}{\rho_A^0} \right) = -D_{AB} \frac{\partial \rho_A}{\partial z} + \rho_A v \quad 1-22$$

Bilan thermique

L'égalité entre le flux de conduction, de convection, de rayonnement q_r et d'évaporation s'écrit :

$$-\lambda \nabla T = h_c (T - T_{air}) + F_m L_v + q_r \quad \mathbf{1-23}$$

avec L_v la chaleur latente de vaporisation de l'eau.

Le coefficient de transfert thermique h_c dépend des propriétés physiques de l'air et de l'épaisseur de la couche limite donc de la vitesse d'air. Dans le cas de géométrie simple (notamment le cas de la plaque plane), il peut être obtenu par des corrélations [15]. On peut aussi le déduire des cinétiques expérimentales en écrivant le bilan thermique lors de la phase isenthalpe.

Les échanges par rayonnement de grandes longueurs d'ondes dépendent de l'émissivité du produit. En début de séchage, l'émissivité en surface est proche de celle de l'eau (0,95). Au fur et à mesure que le produit s'assèche, elle se rapproche de celle du produit sec. Blanc [4] a mesuré l'émissivité de sa peinture en comparant les mesures de températures obtenues avec un thermocouple et un pyromètre infrarouge.

Ainsi, les transferts de masse et de chaleur couplés aux phénomènes de retrait ont ici été présentés. Dans ces équations, de nombreuses propriétés physicochimiques du produit (activité, capacité thermique, propriétés radiatives,...) sont introduites. Puisque la composition du produit change, celles-ci évoluent au cours du séchage. Une étude bibliographique a montré la possibilité de les déduire d'expériences complémentaires. Toutefois, pour modéliser le comportement thermique et hydrique d'un système solvant/polymère lors de son séchage, l'un des paramètres important à déterminer est le coefficient de diffusion du solvant à travers le polymère. Comme il varie de plusieurs ordres de grandeur au cours du séchage, il est difficile à obtenir expérimentalement. Les différentes approches proposées dans la littérature permettant de déterminer le coefficient de diffusion d'un système solvant/polymère à partir de considérations théoriques ou des cinétiques de séchage sont maintenant présentées.

1.3 Détermination du coefficient de diffusion

L'influence de la température est classiquement décrite par une loi d'Arrhenius faisant intervenir l'énergie d'activation (E_a). Celle-ci est généralement considérée comme constante et est comprise entre 20 et 60 kJ.mol⁻¹ [4,30]. L'évolution du coefficient de diffusion avec la teneur en solvant est plus délicate à déterminer [36]. Dans la littérature, il existe différentes approches théoriques, expérimentales ou numériques. Les modèles retenus traduisent souvent une dépendance en exponentielle et contiennent plusieurs paramètres inconnus. Après quelques rappels théoriques, nous présentons dans cette étude bibliographique, les différentes méthodes expérimentales et numériques qui ont été mises en œuvre pour estimer le coefficient de diffusion d'un système solvant/polymère.

1.3.1 Approches théoriques

Le coefficient de diffusion introduit dans le bilan de masse est en fait le coefficient de diffusion mutuelle du mélange binaire. Noté D_{AB} ou D_{BA} en toute rigueur, il pourra par la suite être simplement mentionné par D sans ambiguïté. Il exprime la capacité des molécules d'une des phases à diffuser à travers les molécules de l'autre en présence de gradient de concentration. Il dépend entre autre des coefficients de self-diffusion des deux constituants qui traduisent la mobilité des molécules à se déplacer au sein du mélange en l'absence de gradient de concentration [37].

1.3.1.1 Théorie des volumes libres

La théorie des volumes libres développée par Vrentas et Duda [38, 4] est basée sur l'hypothèse que les molécules diffusent en utilisant les espaces libres entre les molécules par sauts discrets. Le coefficient de diffusion mutuel D_{AB} est par définition égal à D_{BA} et est donné par [4] :

$$D = D_0 e^{\left(\frac{-\gamma_{AB} (w_A \hat{V}_A + \zeta w_B \hat{V}_{BA})}{\hat{V}_{FH}} \right)} (1 - f_A)^2 (1 - 2\chi_{AB} f_A) e^{-\frac{E_a}{RT}} \quad \mathbf{1-24}$$

avec D_0 et γ des constantes, χ_{AB} le paramètre d'interaction des deux constituants, E_a l'énergie d'activation de la diffusion massique et ζ le rapport des volumes molaires des deux constituants.

Les volumes massiques au zéro absolu du solvant et du soluté sont respectivement notés \hat{V}_A et \hat{V}_B . \hat{V}_{FH} est le volume total libre.

1.3.1.2 Corrélations

Il existe dans la littérature de nombreuses corrélations permettant d'estimer le coefficient de diffusion mutuelle en phase liquide d'un mélange binaire. Le coefficient de diffusion mutuel à dilution infinie D^0 est lié au coefficient de diffusion mutuel par l'intermédiaire d'un terme correctif α tel que :

$$\alpha = \frac{\partial \ln a_w}{\partial \ln x_A} \quad \mathbf{1-25}$$

avec a_w l'activité du solvant et x_A la fraction molaire du solvant.

Dans la littérature, on trouve différentes corrélations synthétisées dans le Tableau 1-1 [39]. On note r le rayon moléculaire, μ la viscosité, M_w la masse molaire, V_w le volume molaire et ϕ le facteur d'association.

Corrélations	
Equation de Stokes-Einstein	$D^0 = \frac{RT}{6\pi\mu_r}$
Méthode empirique de Wilke-Chang	$D^0 = 7,4 \cdot 10^{-12} \frac{(\Phi M_{w,A})^{0,5} T}{\mu_l^{0,6} V_{w,B}}$
Corrélations de Hayduck-Minhas	$D^0 = 1,25 \cdot 10^{-12} (V_{w,B}^{-0,19} - 0,292) \mu_A^{(9,58/V_{w,B} - 1,12)} T^{1,52}$

Tableau 1-1 : Corrélations donnant le coefficient de diffusion de mélange binaire liquide.

Les différentes approches théoriques ainsi développées nécessitent la connaissance de nombreux paramètres physico-chimiques du mélange qui peuvent être difficiles à appréhender notamment dans le cas de produits industriels rendant souvent leur utilisation délicate.

1.3.2 Utilisation de la solution analytique de l'équation de Fick

De nombreux auteurs ont cherché à estimer le coefficient de diffusion de leur système solvant/polymère en utilisant la solution analytique de l'équation de Fick [26, 40, 41].

En considérant un coefficient de diffusion constant, une épaisseur de produit constante et un système isotherme, la solution analytique de l'équation de Fick s'écrit [42, 43]:

$$M^*(t) = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{(2k+1)^2} \exp\left[-(2k+1)^2 \frac{\pi^2}{4} t^*\right] \quad \mathbf{1-26}$$

$$\text{ou encore} \quad X^*(t) = \frac{8}{\pi^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{(2k+1)^2} \exp\left[-(2k+1)^2 \frac{\pi^2}{4} t^*\right] \quad \mathbf{1-27}$$

où M^* , X^* et t^* sont des variables adimensionnées telles que :

$$M^*(t) = \frac{M(t) - M_i}{M_f - M_i}, \quad X^*(t) = \frac{X(t) - X_f}{X_i - X_f} \quad \text{et} \quad t^* = \frac{D}{e^2} t \quad \mathbf{1-28}$$

avec M_i et M_f , X_i et X_f respectivement les masses et teneurs en eau initiales et à l'équilibre et e l'épaisseur du produit.

Dans le cas d'un milieu déformable, l'épaisseur du produit n'est pas constante. De même, le coefficient de diffusion évolue au cours du séchage. On peut cependant considérer que sur de courts instants, les variations de l'épaisseur et du coefficient de diffusion sont négligeables. A partir d'essais de séchage en convection, il est possible

de déduire de la solution analytique et des relevés expérimentaux, un coefficient de diffusion global du produit, fonction de la teneur en eau moyenne et identifié par palier sur de courts intervalles de temps. Plusieurs exemples d'approche du coefficient de diffusion de solution polymère à partir de la solution analytique de l'équation de Fick sont présentés.

Expression explicite du coefficient de diffusion effectif

Mintzlaff [25] considère que la solution analytique de l'équation de Fick converge rapidement et la limite donc au premier terme de la série. Il obtient alors l'expression suivante du coefficient de diffusion :

$$D = -\frac{4}{\pi^2} \frac{e^2}{t} \ln \left(\frac{X(t) - X_f}{X_i - X_f} \frac{\pi^2}{8} \right) \quad \mathbf{1-29}$$

Il sèche son produit avec de l'air à différentes humidités, ce qui correspond à des teneurs en eau différentes afin d'obtenir la variation du coefficient de diffusion en fonction de la teneur en eau adimensionnée et ce pour des températures de 25°C, 32°C et 40°C. Il modifie la corrélation de Vignes [39], qui fait intervenir le coefficient de diffusion à dilution infinie des constituants obtenu par la corrélation de Wilke-Chang. L'influence de la température est décrite par une loi d'Arrhenius. L'énergie d'activation est identifiée à partir des mesures faites à l'instant initiale et est choisie comme étant une fonction linéaire de la fraction massique de solvant.

Solution analytique de l'équation de Fick et théorie des volumes libres

Mamaliga et al. [44] déterminent, quant à eux, le coefficient de diffusion de systèmes acétate polyvinylique/méthanol et acétate polyvinylique/toluène à partir de la mesure des cinétiques de sorption. Dans un premier temps, le coefficient de diffusion est déduit des cinétiques de sorption. Pour cela, Mamaliga considère que la variation du coefficient de diffusion sur un intervalle défini par $X \pm 0,2 X$ est suffisamment faible pour que les cinétiques de sorption soient décrites par la solution analytique de l'équation de Fick. Il détermine alors les valeurs du coefficient de diffusion pour des teneurs en solvant allant jusqu'à $X = 0,3 \text{ kg.kg}^{-1}$ pour le PVAc/méthanol et $X = 0,8 \text{ kg.kg}^{-1}$ et cela pour trois températures (20, 40 et 60°C). Le coefficient de diffusion varie selon les conditions entre $10^{-10} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ et $10^{-15} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$. La dépendance du coefficient de diffusion avec la concentration en solvant et la température est ensuite exprimée par la théorie des volumes libres. Les paramètres D_0 et ζ sont identifiés à partir des résultats expérimentaux. Les autres paramètres de l'expression (Eq. 1-24) sont issus de la littérature. Dans ce travail, l'activité des solvants est donnée par la loi de Flory-Hyggins décrite précédemment (Eq. 1-8).

Perrin et al. [21], qui souhaitent améliorer les performances de membranes, cherchent à caractériser l'influence de la cristallinité sur les cinétiques de sorption et le coefficient de diffusion de mélanges binaires alcool polyvinylique/eau et alcool polyvinylique/ethanol. Contrairement à Mintzlauff [25] et Mamaliga [44] qui obtiennent en simplifiant la solution analytique de l'équation de Fick une expression explicite du coefficient de diffusion, ils choisissent d'identifier le coefficient de diffusion à différentes humidités de l'air. Au vu de la forte décroissance du coefficient de diffusion avec la teneur en solvant, il fait le choix d'une loi exponentielle de la concentration volumique du solvant faisant intervenir un paramètre lié à l'effet plastifiant du solvant sur le polymère. L'influence de la température n'est pas mise en évidence, l'ensemble des mesures étant réalisé à 40°C. Par contre, l'estimation du coefficient de diffusion pour des PVA ayant différents taux de cristallinité montre clairement que plus le polymère est cristallin plus la diffusion du solvant à travers celui-ci est lente. Le coefficient de diffusion devient plus faible.

A partir de la solution analytique de l'équation de Fick, il est donc possible, d'estimer un coefficient de diffusion effectif d'un système solvant/polymère. A titre indicatif, nous notons que des travaux similaires ont été effectués dans le domaine de l'agro-alimentaire. Le coefficient de diffusion d'aliments, est, comme pour les systèmes solvant/polymère, classiquement exprimé comme une fonction exponentielle de la teneur en eau (Tableau 1-2). Par contre, dans le cas des aliments, la loi d'Arrhenius qui traduit l'influence de la température est parfois évaluée en fonction de la température d'air de séchage et non de celle du produit.

Modèle retenu pour le coefficient de diffusion	Paramètres	Produit	Référence
$D(X,T) = D_0 e^{-(aT_{air}+b)X} e^{-\frac{E_a}{RT_{air}}}$	$D_0, a, b \text{ et } E_a$	Grappes de raisin	Azzouz et al., 2002 [45]
$D(X,T) = D_0 e^a X e^{-\frac{E_a}{RT}}$	$D_0, a \text{ et } E_a$	Mangue	Ruiz_Lopez et al., 2006 [46]

Tableau 1-2 : Expressions du coefficient de diffusion de l'eau dans les aliments

Les techniques expérimentales permettant de déterminer le coefficient de diffusion ne sont pas nombreuses et diffèrent selon le domaine de concentration. A partir d'expériences simples de séchage ou de cinétiques de sorption/désorption, il est possible de déduire de la solution analytique un coefficient de diffusion global. On notera le côté paradoxal de la méthode proposée ici qui permet de déterminer le coefficient de diffusion en fonction de la concentration moyenne en eau à partir de la solution analytique de l'équation de Fick obtenue en formulant l'hypothèse que D et e sont constants. Les résultats obtenus par cette méthode permettent entre autre de fixer un ordre de grandeur du coefficient de diffusion d'une solution polymère (entre

$10^{-10} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ et $10^{-15} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$) et de constater qu'il varie de plusieurs ordres de grandeurs au cours du séchage. Enfin, la dépendance du coefficient de diffusion avec la température peut être appréhendée par une loi d'Arrhenius.

1.3.3 Identification par méthode inverse à partir d'un modèle

Dans de nombreux travaux concernant le séchage de système solvant/polymère, un modèle permettant de prédire l'évolution de la température et du gradient de concentration est développé. Dans ces modèles, le coefficient de diffusion est classiquement exprimé par une relation dépendant de la température et de la teneur en solvant, concentration massique ou volumique,... dont plusieurs paramètres sont inconnus. Ceux-ci peuvent alors être estimés en confrontant des résultats expérimentaux avec les simulations obtenues grâce au modèle. Plusieurs auteurs proposent d'ajuster ces paramètres en utilisant une méthode d'essais et d'erreurs. Dans cette perspective, Kechaou [47] propose d'identifier les courbes de flux massique simulées avec les courbes expérimentales lors du séchage convectif de gels très hydratés. Il introduit dans son modèle un coefficient d'échange global et considère que la température dans le gel et le substrat est uniforme. Grâce à une méthode d'essais et d'erreurs, il détermine les coefficients de la relation suivante :

$$D(X,T) = D_0 (a - b e^{-cX}) e^{\frac{E_a}{RT}} \quad \text{1-30}$$

La valeur de D_0 est obtenue à partir de données bibliographiques. Le coefficient de diffusion ainsi déterminé est compris entre 10^{-10} et 10^{-12} . Il propose d'exprimer l'énergie d'activation par :

$$E_a = 210^4 + 2,810^4 e^{(-1,9457 X)} \quad \text{1-31}$$

Chettaf [24] reprend l'expression établie par Navarri en 1992 [18] pour le coefficient de diffusion. Cette relation nécessite l'estimation de trois paramètres D_0 , a et E_a :

$$D(X,T) = D_0 e^{\frac{E_a}{RT}} e^{-\frac{a}{X}} \quad \text{1-32}$$

Il définit alors un intervalle pour chaque paramètre et cherche la meilleure combinaison de paramètres parmi celles envisagées. Pour déterminer les valeurs optimales, il prend en compte six expériences sur papier et six expériences sur aluminium. Il obtient des valeurs différentes des paramètres selon le support choisi. Si l'allure générale des courbes d'humidité et de température est correcte, il obtient jusqu'à 8 % d'écart sur l'humidité et presque 10°C d'écart en température. Il justifie ces écarts par des erreurs de mesure, d'évaluation des paramètres liés au produit comme son émissivité. Il signale aussi que l'énergie perdue par l'échantillon (faces latérales, convection sur la face inférieure) n'est pas prise en compte.

Les travaux actuels dans ce domaine consistent à déterminer les paramètres inconnus de l'expression retenue pour le coefficient de diffusion par méthode inverse. Il s'agit alors de minimiser à l'aide d'un algorithme d'optimisation une fonctionnelle

basée sur un critère quadratique prenant en compte des résultats expérimentaux et des valeurs calculées avec un modèle. Généralement, le critère d'écart quadratique s'écrit :

$$s(P) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \left[(Y_i - \tilde{Y}_i(P))^2 \right] \quad \mathbf{1-33}$$

avec Y et \tilde{Y} respectivement les valeurs expérimentales et simulées. N correspond au nombre de points de mesures (masse et/ou température) et P est le vecteur des paramètres inconnus.

En plus du système physique et du modèle, la mise en œuvre d'une méthode inverse nécessite de mettre en place une procédure d'optimisation (Figure 1-3).

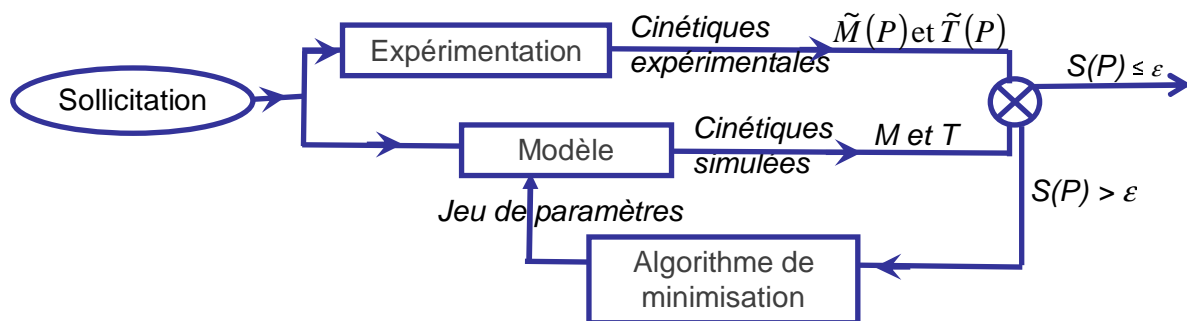


Figure 1-3 : Principe d'une méthode inverse.

Le Tableau 1-3 donne une liste non exhaustive des principales expressions utilisées dans les modèles de séchage pour définir l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la température et de la teneur en eau. On peut trouver d'autres expressions dans la littérature, où intervient par exemple la température de transition vitreuse ou le taux de cristallinité du polymère [29]. Notons que des travaux analogues se développent aussi dans le domaine de l'agroalimentaire. Bialobrzewski et Markowski [48] déterminent ainsi par méthode inverse le coefficient de diffusion de l'eau présente dans le céleri. Hadrich [49] et Kechaou [47] suivent une démarche analogue lors de la modélisation des transferts de masse et de chaleur au sein d'une banane, assimilée à un cylindre déformable.

Modèle retenu pour le coefficient de diffusion	Paramètres	Produits	Références
$D(X,T) = D_0 e^{-\frac{a}{X}} e^{-\frac{E_a}{RT}}$	$D_0, a \text{ et } E_a$	PVA	Navarri, 1992 [19] Chettaf, 1994 [24]
		Enductions pharmaceutiques	Le Person, 1996 [6]
		Peinture	Blanc, 1997 [4] Dufour, 2000 [30]
$D(X,T) = D_0 \left(a - b e^{-cX} \right) e^{-\frac{E_a}{RT}}$	$D_0, a, b \text{ et } c$	Gel physique (gélatine)	Kechaou, 1989 [47] Zagrouba, 1993 [7]
$D(X,T) = D_0 \left(1 - a e^{-bX} \right) e^{-\frac{E_a}{RT}}$			
avec $E_a = 2.10^4 + 2,8.10^4 e^{(-1,945 X)}$			
$D(X,T) = D_0 e^{-\left[\frac{1-f_A}{f_A} \right]} e^{-\frac{E_a}{RT}}$	$D_0 \text{ et } E_a$	Peinture	Lamaison, 2000 [3]
$D(X,T) = e^{-\left[\frac{a+bX}{1+cX} \right]} e^{-\frac{E_a \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)}{R}}$	a, b et c d, e et f	Maltodextrin et PVP	Räderer et al., 2002 [50]
avec $E_a = \frac{d+eX}{1+fX}$			

(T₀ : Température de référence)

Tableau 1-3 : Expressions du coefficient de diffusion de l'eau dans un mélange polymère.

Exemples d'estimation de paramètres du coefficient de diffusion

Navarri [18] se base sur les travaux de Okazaki et Kechaou [47] pour exprimer le coefficient de diffusion d'une enduction à base de PVA par la relation 1-32. L'énergie d'activation est supposée constante et la température uniforme dans le produit et le substrat. Les coefficients de transferts de masse et de chaleur sont calculés par des corrélations à partir des premiers instants de séchage. Les paramètres D_0 , a et E_a sont déterminés par un algorithme d'optimisation de Levenberg – Marquardt [51, 52]. L'optimisation est réussie dans la mesure où les valeurs initiales choisies ne sont pas trop éloignées de la solution. De plus pour son optimisation, Navarri s'affranchie de la résolution du bilan thermique en utilisant directement les données expérimentales. Les trois paramètres sont identifiés à partir de quatre expériences réalisées sur support de verre avec des épaisseurs et des flux infrarouges différents. La bonne concordance des courbes simulées et expérimentales valide la loi choisie pour exprimer le coefficient de diffusion. Enfin, Navarri vérifie l'unicité de ces résultats en étudiant la sensibilité de chacun des paramètres et en simulant d'autres expériences avec des épaisseurs, des supports, des modes de séchage et des puissances

infrarouges différents. Il est intéressant de noter qu'il a essayé d'exprimer l'influence de la teneur en eau par un polynôme de degré deux. Les ajustements des courbes simulées avec les courbes expérimentales sont meilleurs puisque quatre paramètres et non trois sont identifiés. Cependant, il n'y a pas unicité des résultats ce qui rend l'exploitation de cette expression difficile.

Dans son étude sur le séchage de la réticulation des peintures, Blanc [4] considère que le coefficient de diffusion varie sous la forme d'une loi exponentielle faisant intervenir l'humidité du produit et d'une loi de type Arrhenius pour la température. Elle utilise alors un programme d'optimisation pour ajuster les profils d'humidité théoriques et expérimentales de trois opérations de séchage aux puissances infrarouges différentes. Elle introduit dans sa recherche de paramètres un intervalle physique et borne donc chacun des paramètres. Les coefficients de transferts sont déterminés par des corrélations. L'étude de la sensibilité des trois coefficients confirme leur unicité.

En 1996, Le Person [6] qui a retenu la même expression, définit une fonction objectif basée sur l'évolution de la masse et utilise la méthode de Gauss-Newton pour en rechercher le minimum global. La détermination des valeurs initiales se fait en réalisant un quadrillage du domaine susceptible de contenir l'optimum. Il utilise 30 nœuds spatiaux et ajuste pour son optimisation les cinétiques d'évaporation. Il identifie la valeur de E_a , et cherche des valeurs de D_0 et a pour différentes préparations (avec ou sans principe actif, avec ou sans excipient). Il met ainsi en évidence ce qu'il appelle l'effet frein de la phase active sur la cinétique d'évaporation.

Lamaison [3] propose une expression un peu différente pour le coefficient de diffusion (Tableau 1-3), provenant de la théorie de Mackie et Meares et fonction de la fraction volumique du solvant. Elle tient compte du gradient de température dans la peinture et suppose la température du substrat uniforme. Les paramètres inconnus sont identifiés à partir des cinétiques d'un essai en infrarouge. Confrontée à des problèmes de convergence, elle impose la valeur minimale du coefficient de diffusion à $5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Le modèle est validé pour plusieurs puissances infrarouges. L'évolution des températures simulées est en bon accord avec les courbes expérimentales. Par contre, une erreur s'accumule sur les cinétiques de séchage pendant la deuxième phase, certainement à cause de la valeur minimale imposée à $D(f_A, T)$.

Estimation de points d'interpolation du coefficient de diffusion

Enfin, Doumenc et Guerrier [53] estiment le coefficient de diffusion mutuelle d'un système solvant / polymère à partir d'expériences simples d'évaporation. Il ne s'agit plus ici d'identifier les paramètres inconnus d'une expression mais de déterminer le coefficient de diffusion pour différentes concentrations et d'interpoler les résultats par splines cubiques. L'algorithme d'optimisation utilisé est celui de Levenberg-Marquardt. Des tests numériques ont montré dans un premier temps la faisabilité de la méthode. Puis, des tests de robustesse sont menés en simulant des

pseudos mesures, c'est-à-dire des résultats numériques perturbés par un bruit gaussien et en incorporant des erreurs sur les grandeurs physiques du problème. Plusieurs cinétiques de séchage sont simulées (épaisseurs différentes). Au final, les résultats obtenus ont montré l'importance d'estimer en même temps le coefficient de diffusion et le coefficient de convection.

Dans cette approche par méthode inverse, les différents paramètres du coefficient de diffusion sont ajustés à l'aide d'une procédure de minimisation de façon à minimiser l'écart entre les cinétiques de séchage expérimentales et simulées. Les modèles développés dans les études précédentes sont basées sur de nombreuses hypothèses (pas de gradient de température, pas de phénomènes de convection au sein du produit,...). Les valeurs numériques obtenues pour les paramètres identifiés peuvent être peu significatives puisqu'elles dépendent beaucoup du modèle établi. Il serait donc légitime de parler plutôt ici de l'estimation par méthode inverse d'un pseudo-coefficient de diffusion.

Modéliser le comportement thermo-hydrigue et parfois mécanique d'un milieu déformable au cours de son séchage permet de mieux appréhender les processus physiques mis en jeu. Après avoir été validé en confrontant des simulations à des résultats expérimentaux, le modèle peut ensuite être utilisé pour compléter une étude expérimentale en vue de dimensionner ou d'adapter un séchoir ou bien d'optimiser le processus de séchage, c'est-à-dire améliorer la qualité finale du produit, diminuer la consommation d'énergie, minimiser le temps de séchage,... Dans cette perspective d'optimisation de procédé, une approche statique peut être envisagée et consiste à déterminer les points de fonctionnement optimaux du séchoir (les variables de commande sont alors supposées constantes tout au long du séchage). Nous nous intéressons dans cette dernière partie à l'approche dynamique qui consiste à déterminer une loi de commande des variables manipulables.

1.4 Optimisation d'un procédé de séchage

L'optimisation des procédés de séchage est une préoccupation relativement récente [47]. Lorsque l'on cherche à améliorer un procédé de séchage différents objectifs peuvent être fixés suivant le mode de séchage, le type de produits ou d'applications au niveau industriel. La réduction du temps de séchage, permettant un accroissement de la productivité, peut être un objectif prioritaire. Il peut aussi s'agir d'améliorer la qualité du produit final ou bien de diminuer les coûts de fabrication notamment en restreignant les apports énergétiques. Le contrôle du procédé de séchage peut aussi se révéler efficace pour atténuer l'influence des perturbations externes. En général, plusieurs de ces demandes sont formulées, et celles ci sont parfois contradictoires. L'objectif est alors de trouver le meilleur compromis possible. Dans ce cas, le contrôle par régulateur est insuffisant. Une stratégie de contrôle par une commande optimale est préférable. Dufour [54] qui a publié récemment un état de l'art des différentes méthodes de contrôle/commande des procédés de séchage constate que la plupart des commandes de procédés de séchage se font encore aujourd'hui par le biais d'une régulation (la régulation PID représente 90% des techniques employées dans l'industrie). Grâce à l'émergence des techniques

d'optimisation, la commande optimale est de plus en plus préconisée. Les premières applications dans ce domaine ont été réalisées dans l'agroalimentaire [54]. Depuis 1992, ces techniques sont appliquées au séchage de produits tels que les peintures, les produits pharmaceutiques et le bois [54].

Dans le cadre de cette étude, le séchage envisagé associe la convection à un apport infrarouge. L'objectif final consiste à déterminer une loi de commande des infrarouges permettant d'assurer un temps de séchage minimum tout en respectant une contrainte sur la température finale du produit. La minimisation de la consommation énergétique et l'amélioration de la qualité finale du produit sont aussi envisagées. Dans cette perspective, le principe d'un contrôle/commande optimal est brièvement décrit et quelques exemples sont présentés.

Déterminer la commande optimale d'un processus, c'est utiliser le modèle qui le décrit pour déterminer parmi toutes les commandes possibles, celle qui permet de satisfaire [55, 56] :

- **l'optimisation d'un critère** qui peut être lié aux variables d'état du système ou à la commande.
- **le respect de diverses contraintes** technologiques (plage de fonctionnement, vitesse limitée, débit limité,...). De nombreuses méthodes existent pour intégrer les contraintes au critère à optimiser telles que les méthodes des pénalités, les multiplicateurs de Lagrange,...[57] .
- le respect de conditions initiales et finales.

D'une façon générale, les variables de commande étant regroupées dans un vecteur U et les variables d'état dans un vecteur x , le critère à optimiser s'écrit :

$$J = f(x_i, t_i, x_f, t_f) + \int_{t_i}^{t_f} g(x, U, t) dt \quad \mathbf{1-34}$$

avec t_i le temps initial et t_f le temps final.

Le premier terme (f) nommé partie terminale privilégie le respect des conditions initiales et finales. Pierre Borne [55] explique que la prise en compte de ce terme est en général complexe et qu'il est donc de surcroît souvent choisi comme nul.

Pour le second terme (g), les principaux critères utilisés sont :

- **des critères de temps minimum** (minimisation des coûts liés à la durée).

$$J = \int_{t_0}^{t_f} dt \quad \mathbf{1-35}$$

- **des critères quadratiques** notamment pour la minimisation de l'énergie mis en œuvre.

$$J = \int_{t_0}^{t_f} u^2 dt \quad 1-36$$

Le critère quadratique peut aussi permettre de minimiser l'écart par rapport à une trajectoire ou une consigne.

- des **critères en consommation** liés aux coûts de fonctionnement.

$$J = \int_{t_0}^{t_f} |u| dt \quad 1-37$$

Quelque soit le critère défini, la détermination de la loi de commande se fait par une approche en boucle fermée intégrant un algorithme d'optimisation [58]. La commande optimale peut être calculée hors ligne ou en ligne (Figure 1-4). Dans le premier cas, la loi de commande est déterminée au préalable puis appliquée au système. Dans le cas d'une optimisation en ligne, les grandeurs de commande sont modifiées en temps réel.

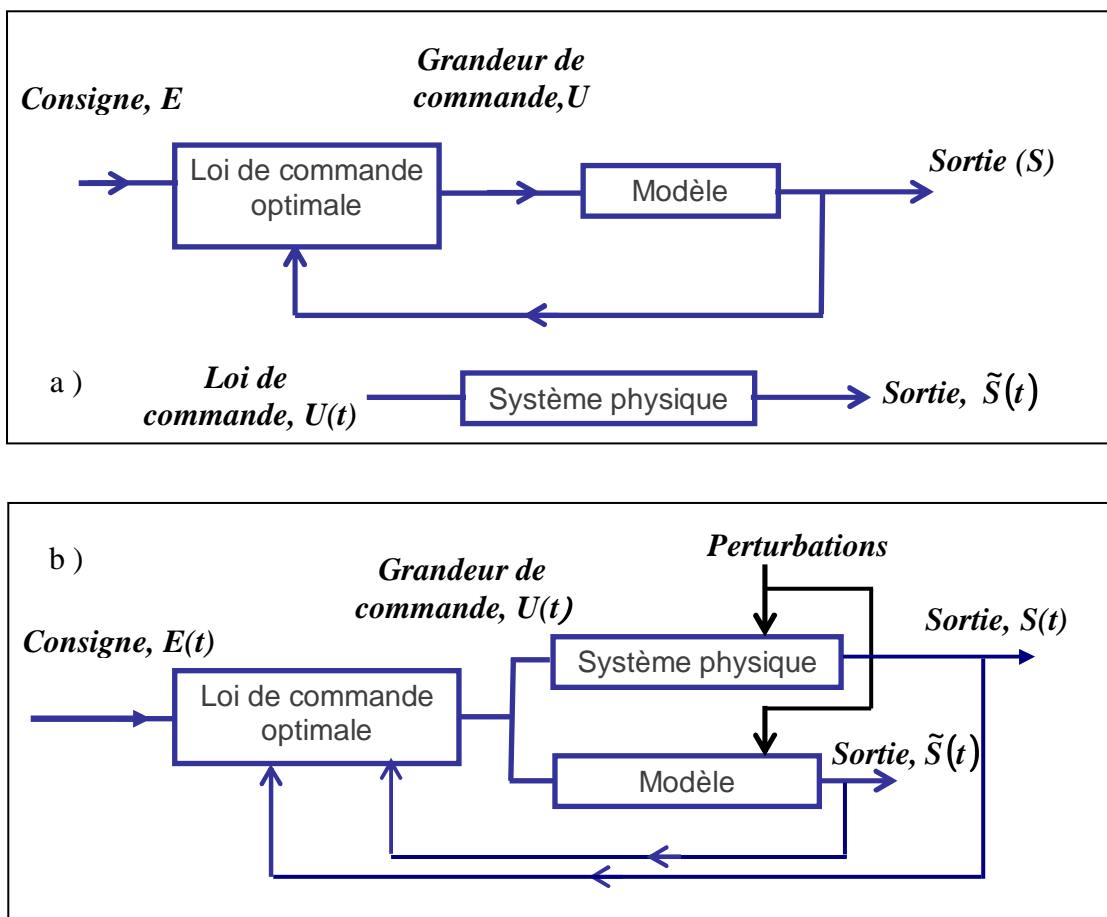


Figure 1-4 : Contrôle optimal a) hors ligne b) en ligne

Les modèles prédictifs de contrôle sont une classe particulière des techniques de contrôle en ligne. Ils consistent à prédire à un instant donné le comportement futur

du produit sur un horizon de temps fixé et à modifier les grandeurs de commande de façon à corriger les écarts par rapport à une trajectoire de référence. L'optimisation en temps réel permet de tenir compte des perturbations sur les variables d'entrées au cours de l'expérimentation. Deux types de schémas de contrôle sont possibles. Les grandeurs de commande peuvent être modifiées après que les perturbations sur les variables d'entrées aient perturbées les variables de sorties (feed-back control). Si les perturbations sur les variables d'entrées sont mesurées, l'influence sur les variables de sorties peut être prédite grâce au modèle et corrigée au préalable (feed-forward control).

Plusieurs exemples de contrôle/commande optimale de procédés de séchage sont décrits ci-dessous. La diversité des produits, des modes de séchage et des algorithmes d'optimisation utilisés dans ces exemples montre l'étendue des possibilités dans ce domaine. L'intérêt de cette étude bibliographique est porté principalement sur la définition de la fonction objectif. En effet, selon les études menées, même si l'objectif est généralement d'améliorer le temps de séchage tout en respectant des contraintes de qualité, les formulations utilisées sont multiples.

Minimisation du temps de séchage et de la consommation énergétique

Trelea et al. [59] veulent minimiser le coût du séchage convectif de céréales (temps de séchage et consommation de fuel) tout en respectant plusieurs contraintes sur la qualité du produit final (teneur en eau finale imposée pour assurer la stabilité biologique). La température d'air doit rester comprise entre 20 et 90°C. La consommation de fuel est supposée proportionnelle à la différence de température entre l'air chaud et la température d'air ambiant. L'optimisation est menée en et hors ligne. Trelea et al. montrent qu'en optimisant la température, il est possible de réduire le temps de séchage de 3,4 % et de diminuer la consommation de fuel de 4,1%. Les résultats obtenus dépendent essentiellement de l'objectif défini. Le contrôle en temps réel permet de prévenir les risques de détérioration liés aux perturbations.

Maximisation d'une fonction qualité

Kaminski et Strumillo [60] ont mené une étude théorique et expérimentale du séchage par lit fluidisé d'un produit biologique composé de plusieurs substances actives qui changent et se désactivent progressivement au cours du séchage. Cette dégradation du produit est modélisée par une cinétique de réaction du premier ordre ayant un coefficient de réaction fonction de la température et de la teneur en eau. Pour assurer une qualité optimale de leur produit final, Kaminski et Strumillo intègrent cette équation et cherchent ensuite à maximiser la fonction obtenue en modifiant la température et l'humidité du séchoir.

Dans le travail de Ho et al. [61] sur l'optimisation du séchage de produits sensibles tels que les pommes de terre, plusieurs contraintes sont imposées. L'un des objectifs est d'éviter la dégradation des pommes de terre notamment en minimisant la perte de vitamine C. Exprimée comme précédemment par une cinétique de réaction du premier ordre, la fonction qualité définie ne dépend pas de la teneur en eau mais

seulement de la température. Un séchage d'air chaud intermittent est préconisé. La méthode d'optimisation utilisée est la méthode du simplexe contraint et porte sur les temps de cycles.

Poursuite d'une trajectoire assurant la qualité du produit final

Dufour [30, 62] s'intéresse au séchage par infrarouge d'une peinture automobile. Grâce aux connaissances opérateurs et une série de tests expérimentaux réalisés à puissance constante, un profil optimal d'humidité et de température permettant d'obtenir une bonne adéquation entre temps de séchage et qualité du produit final est défini. L'objectif de Dufour est de réaliser la poursuite de ces trajectoires en temps réel. Il modifie l'algorithme de Levenberg-Marquardt afin de tenir compte de contraintes sur l'amplitude et la vitesse de la commande. L'un des éléments fondamentaux de cette approche prédictive est le choix de l'horizon de prédiction. S'il est trop faible, l'algorithme peut générer une commande saturée. S'il est trop grand, le temps de calcul peut devenir important et comme le système physique continue à évoluer pendant ce temps là, les résultats fournis par le modèle s'écartent de la réalité ce qui fausse l'optimisation. Les résultats obtenus ont mis en avant la faisabilité de la méthode et la possibilité de suivre des trajectoires de référence discontinues.

Minimisation du temps de séchage avec respect d'une contrainte en température

Après avoir modélisé le séchage convectif d'une solution d'acétate polyvinylique/toluène, Price et Cairncross [63] s'intéressent à l'optimisation du procédé. Selon eux, le séchage est optimal lorsque la teneur en solvant dans le produit est minimale et que l'apparition de défaut à la surface du produit a été évitée. La méthode utilisée consiste alors à optimiser les coefficients de convection à la surface du produit et sous le substrat de façon à minimiser la teneur en solvant tout en respectant une contrainte sur la température (elle doit rester inférieure à la température d'ébullition). Ils définissent les fonctions objectif ci-dessous :

$$S_1 = \alpha_{\text{bul}}(P_{v,\text{max}} - P_{v,\text{bul}}) \quad \text{et} \quad S_2 = \alpha_{\text{res}} \int_0^{e(t_f)} \rho_A(z) dz + \alpha_{\text{ht}} F_{\text{ht}} \quad \mathbf{1-38}$$

La fonction S_1 force l'algorithme à converger vers la température d'ébullition alors que S_2 est liée à la minimisation de la teneur en solvant. Des limites sur les coefficients de convection sont introduites par le biais de la fonction F_{ht} . α_{bul} , α_{res} et α_{ht} sont des pénalités. L'algorithme modifié de Levenberg-Marquardt est utilisé. Les coefficients de convection optimaux sont déterminés pour des températures de four allant de 110°C à 160°C. La procédure d'optimisation a montré que le coefficient de convection en surface du produit doit être égal ou supérieur au coefficient de convection sous le substrat pour éviter la formation de cloques et a montré l'intérêt d'utiliser une température de four moyenne (teneur finale en solvant minimale obtenue pour $T = 126^\circ\text{C}$).

La nécessité de réduire les coûts de séchage (temps, énergie,...) et d'améliorer la qualité finale des produits a favorisé le développement du contrôle/commande optimal des procédés de séchage. Le développement d'une telle méthodologie qui permet d'optimiser un procédé nécessite de disposer d'un modèle suffisamment fiable. D'autre part, les temps de calcul ne doivent pas être trop grands pour une commande en ligne.

Chapitre 2

Etude expérimentale

Le produit étudié dans ce travail est une solution aqueuse d'alcool polyvinylique (PVA) contenant plusieurs additifs et un plastifiant (le glycérol). Du fait de sa texture très liquide, le produit doit être séché dans un récipient. Avant le séchage, il est donc placé dans une boîte de Pétri en polystyrène de 86 mm de diamètre. La quantité de produit initial est de 8 ml, ce qui représente une épaisseur de 1,3 mm. Le produit subit au cours de son séchage un retrait important. Le produit final doit se présenter sous la forme d'un film uniformément réparti dans le fond de la boîte ayant une teneur en eau donnée. L'objectif est de sécher ce produit dans un temps compatible avec une production industrielle tout en respectant plusieurs contraintes. Tout d'abord, la boîte ne doit pas subir de déformation au cours du séchage. En effet, le produit sec fourni dans sa boîte de Pétri, est destiné à la réalisation d'analyses biochimiques. Il doit pouvoir se décoller facilement de la boîte (pas de réticulation pendant le séchage). Du fait de la complexité des mécanismes mis en jeu et de la méconnaissance du comportement thermique et hydrique du produit une démarche expérimentale a été mise en place pour déterminer les propriétés du produit et établir des cinétiques de séchage dans différentes conditions. Afin de conforter les mesures et l'analyse des phénomènes, des études complémentaires sont menées sur des solutions PVA/eau. Un séchoir pilote et une métrologie conséquente ont été exploités afin de réaliser différents essais de séchage convectifs puis combinés « convectif et rayonnement infrarouge ». Au préalable, les principales propriétés physiques du produit étudié ont été mesurées. Une approche globale des cinétiques de séchage permet de déterminer plusieurs paramètres inconnus et notamment d'estimer un coefficient de diffusion effectif du produit. Les propriétés radiatives du produit sont aussi déterminées, notamment à partir des mesures spectrométriques.

2.1 Caractérisation du produit à sécher et de la boîte de Pétri

2.1.1 Description du produit

Initialement, le produit contient de l'eau (85% de la masse totale), un polymère l'alcool polyvinylique (PVA) et un plastifiant (glycérol) en proportion quasi-identique (6% de la masse totale) ainsi que plusieurs additifs.

L'analyse thermogravimétrique de ce produit, présentée sur la Figure 2-5, montre une première perte de masse d'environ 87% correspondant principalement à l'évaporation de l'eau. Au-delà de 200°C la perte de masse observée est principalement due à l'évaporation du glycérol et à la dégradation du produit notamment du PVA.

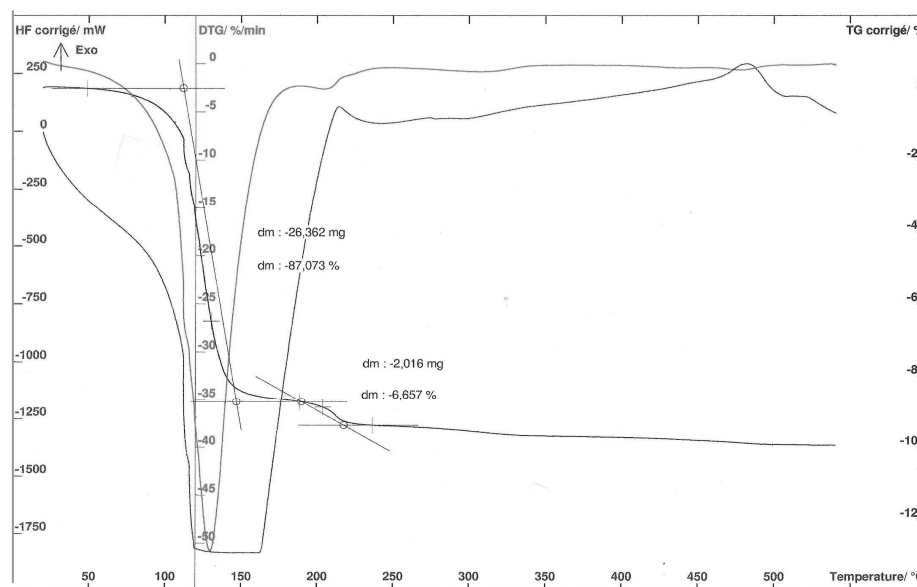


Figure 2-5 : Analyse thermogravimétrique du produit étudié

Le séchage va s'effectuer à une température inférieure à 90°C, la quantité de glycérol évaporée est donc négligeable. Dans la suite de l'étude, on considère une solution constituée de deux constituants [34]: le solvant c'est-à-dire l'eau (indiqué A) et le soluté (indiqué B) comprenant le PVA et le glycérol. Les additifs présents en très faible quantité sont assimilés à de l'eau. La teneur en eau initiale du produit est alors de 7,5 kg.kg⁻¹. Le PVA utilisé dans ce mélange est hydrolysé à 80%, ce qui signifie qu'il contient 20% de l'acétate polyvinyle (PVAc). Le schéma ci-dessous représente la composition du produit étudié en masse :

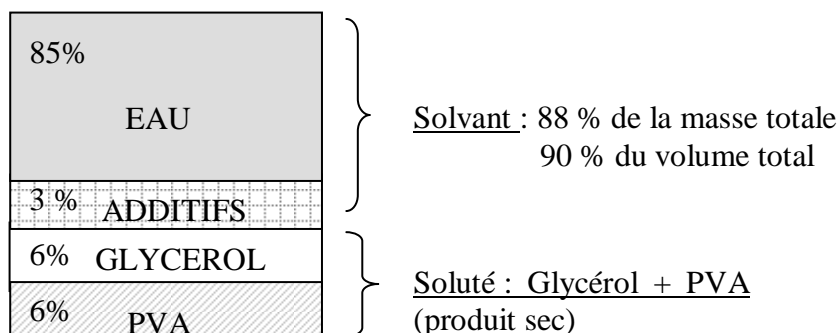


Figure 2-6 : Composition pondérale du produit étudié

Dans cette étude, il est essentiel de connaître la température de transition vitreuse (T_g) qui caractérise le passage de l'état vitreux à l'état viscoélastique [64].

Les températures de transition vitreuse de deux alcools polyvinyliques hydrolysés à 98% et à 80% ont été mesurées par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) avec une vitesse de montée en température de 15°C/min. Le Tableau 2-4 donne les résultats obtenus ainsi que les valeurs données dans la littérature pour le glycérol et le PVAc [65].

	PVA (80%)	PVA (98%)	PVAc *	Glycérol *
T_g (K)	337	351	310	187
T_g (°C)	64	78	37	-86

* Valeurs données dans la littérature [75]

Tableau 2-4 : Transition vitreuse des différents composants

A partir de ces données la température de transition vitreuse d'un mélange peut être estimée par la loi de Fox et Flory [26] donnée ci-dessous :

$$\frac{1}{T_g} = \sum \frac{w_i}{T_{gi}} \quad \text{2-39}$$

où w_i et T_{gi} sont respectivement la fraction massique et la température de transition vitreuse du composé i.

La température de transition vitreuse du PVA(80%) étant de 64°C, la température de transition vitreuse du produit sec, constitué de glycérol et de PVA (80%) est estimée à 51°C. L'ajout d'un plastifiant comme le glycérol a donc permis d'abaisser la température de transition vitreuse. Rault et al. [65] ont montré qu'il est possible de décrire la transition vitreuse d'une solution aqueuse de PVA par la loi de Fox et Flory. Ils prennent alors en compte une transition vitreuse de 138 K pour l'eau. Cette démarche est retenue pour exprimer l'évolution de la température de transition vitreuse du produit en fonction de sa teneur en eau.

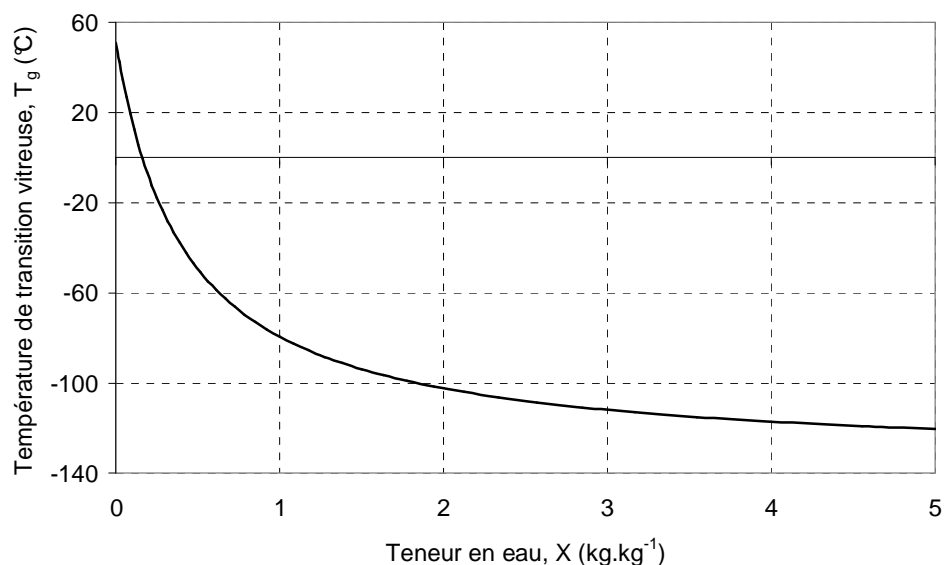


Figure 2-7 : Température de transition vitreuse du produit en fonction de la teneur en eau

La Figure 2-7 montre que la température de transition vitreuse du produit augmente considérablement lorsque la teneur en eau diminue. Lors d'une opération de séchage, la température du produit aura donc tendance à se rapprocher fortement de la température de transition vitreuse. Il est donc possible qu'en surface, où la teneur en eau est la plus faible, le polymère passe à l'état vitreux.

2.1.2 Propriétés physiques

La plupart des propriétés physiques du produit étudié ont été mesurées. Les propriétés de deux types d'alcools polyvinyliques (PVA hydrolysé à 98% et à 80%) secs et placés en solution aqueuse ont aussi été déterminées à titre de comparaison. Celles de l'eau sont exprimées en fonction de la température grâce aux diverses expressions trouvées dans la littérature [18,9].

2.1.2.1 Masse volumique

Dans un premier temps, les densités du PVA(98%) et du PVA(80%) ont été déterminées par la méthode de la fiole jaugée (pycnomètre). Le solvant utilisé est le méthanol. On aboutit à des valeurs très proches (Tableau 2-5).

	PVA (98%)	PVA (80%)	Glycérol*
Masse volumique (kg.m ⁻³)	1359	1347	1260

* Valeur donnée dans la littérature [67]

Tableau 2-5 : Masse volumique

Pour un mélange binaire, le volume massique du soluté ($V_{m,B}$) est lié aux masses volumiques ρ_A° et ρ_B° par [17, 18]:

$$V_{m,B} = \frac{V}{m_B} = \frac{1+X}{\rho(X)} = \frac{1}{\rho_B^\circ} + \frac{X}{\rho_A^\circ} \quad 2-40$$

où V et ρ sont respectivement le volume et la masse volumique du mélange.

Les masses volumiques des deux mélanges PVA(98%)/eau et PVA(80%)/eau ont été déterminées pour plusieurs teneurs en eau (Figure 2-8). L'ensemble des points expérimentaux a une répartition satisfaisante autour de la droite théorique donnée par la relation 2-40. Le volume massique du soluté est donc une fonction linéaire de la teneur en eau moyenne du produit ce qui signifie que l'additivité des volumes de l'eau et du polymère est vérifiée.

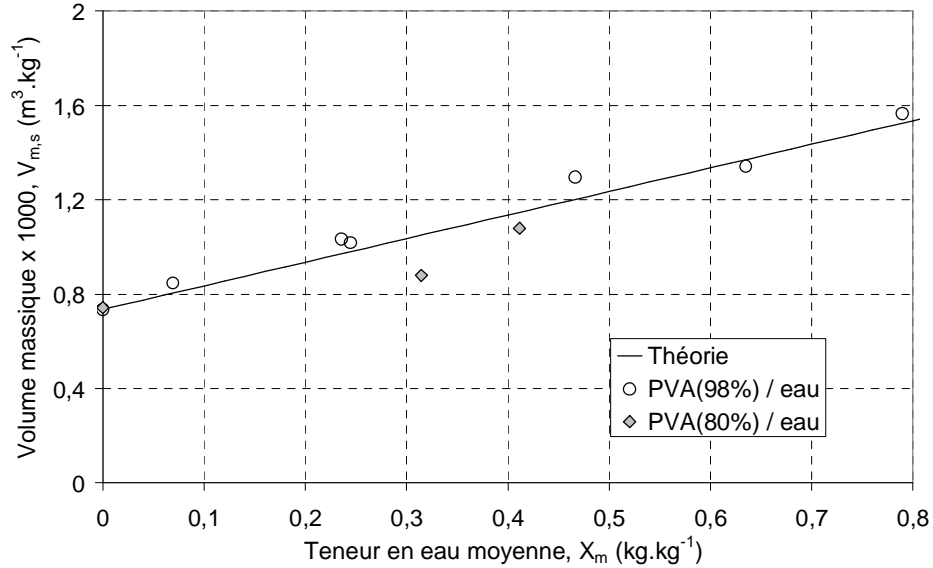


Figure 2-8 : Volume massique du soluté en fonction de la teneur en eau moyenne

La loi d'additivité des volumes étant vérifiée pour un mélange PVA/eau, elle est supposée vérifiée pour le produit étudié qui contient en plus du glycérol. A partir des données du Tableau 2-5, la masse volumique du produit sec est estimée à $\rho_B^0 = 1300 \text{ kg.m}^{-3}$. La masse volumique du produit s'écrit alors :

$$\rho(X) = \rho_B^\circ \frac{1+X}{1+\psi X} \quad 2-41$$

avec ψ le coefficient de retrait linéaire.

Nous avons constaté qu'au cours de son séchage, le produit étudié subit uniquement une diminution de l'épaisseur (variation négligeable de la surface). Le retrait en plus d'être idéal est donc supposé unidirectionnel. Dans ce cas, le coefficient de retrait linéaire est fonction uniquement aux masses volumiques des constituants :

$$\psi = \frac{\rho_B^0}{\rho_A^0} = 1,3 \quad 2-42$$

2.1.2.2 Chaleur massique

La chaleur massique des différents produits est obtenue par calorimétrie différentielle à balayage. Elle est calculée à partir de la mesure du flux de chaleur de l'échantillon :

$$C_p = \frac{\left(\frac{dH}{dt}\right)}{m\left(\frac{dT}{dt}\right)} \quad 2-43$$

où (dH/dt) est le flux de chaleur, m la masse de l'échantillon et (dT/dt) la vitesse de balayage en température.

Une première mesure avec des capsules vides permet d'éliminer l'influence des creusets en aluminium et d'obtenir la ligne de base. Puis, pour limiter l'erreur sur la mesure de vitesse de balayage (incidence directe sur la dérive du flux), une deuxième mesure est effectuée dans les mêmes conditions avec du saphir dont la chaleur massique est parfaitement connue. Le saphir utilisé a une masse de 22,1 mg. Enfin, un dernier passage est effectué avec le matériau de chaleur massique inconnue. La chaleur massique de l'échantillon est déduite de ces trois mesures par :

$$C_p = C_{p_{saphir}} \frac{m_{saphir}}{m} \frac{\left(\frac{dH}{dt}\right) - \left(\frac{dH}{dt}\right)_{vide}}{\left(\frac{dT}{dt}\right)_{saphir} - \left(\frac{dT}{dt}\right)_{vide}} \quad 2-44$$

L'évolution de la chaleur massique a été déterminée sur la plage de 20 °C-100°C pour le produit sec ainsi que pour les deux alcools polyvinyliques.

Les capacités calorifiques du PVA(98%) et du PVA(80%) laissent apparaître un point d'inflexion correspondant à la transition vitreuse. Dans le cas du produit sec, celle-ci n'est pas clairement visible, notamment à cause de la présence de plastifiant qui décale la transition vitreuse vers les faibles températures. La capacité calorifique du produit sec est supérieure à celle obtenue pour les deux PVA. L'évolution de la capacité calorifique du produit sec est considérée comme linéaire dans cette plage de température :

$$C_{p,s} = 5,73 T + 1225 \quad \text{avec } T \text{ en } ^\circ\text{C} \quad 2-45$$

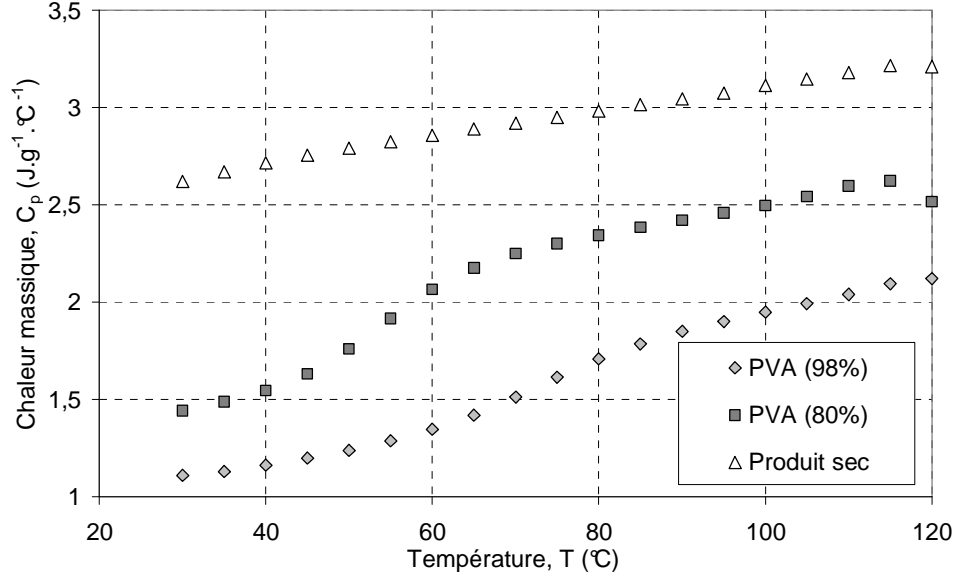


Figure 2-9 : Chaleur massique en fonction de la température

Dans la suite, la chaleur massique du produit est liée aux chaleurs massiques du produit sec et de l'eau [3] par leur fraction massique :

$$C_p = w_A C_{p,A} + w_B C_{p,B} \quad 2-46$$

2.1.2.3 Conductivité thermique

Les conductivités thermiques du PVA et du glycérol sont données dans la littérature et valent respectivement $\lambda_{PVA} = 0,17 \text{ W.m}^{-1}.\text{°C}^{-1}$ [66] et $\lambda_{glyc} = 0,29 \text{ W.m}^{-1}.\text{°C}^{-1}$ [67]. Nous avons retenu, comme Lamaison [3], la corrélation de Jameison et al. pour exprimer la conductivité thermique du produit étudié :

$$\lambda = w_A \lambda_A + w_B \lambda_B - \alpha (\lambda_A - \lambda_B) (1 - w_B^{0,5}) w_B \quad 2-47$$

α est un paramètre ajustable qui à défaut est pris égal à un. λ_A est la conductivité thermique de l'eau et λ_B celle du produit sec. Celui-ci étant un mélange binaire de PVA et de glycérol, la relation (Eq. 2-47) a aussi été utilisée pour estimer sa conductivité thermique équivalente à $\lambda_B = 0,25 \text{ W.m}^{-1}.\text{°C}^{-1}$.

2.1.3 Isothermes de désorption

L'activité du produit étudié ainsi que celles des deux PVA, et d'un mélange PVA/glycérol ont été déterminées pour deux températures d'air : 25°C et 55°C. Pour cela, un échantillon de chacun d'entre eux est placé dans une enceinte climatique dont l'humidité relative et la température d'air peuvent être régulées. Après plusieurs heures, l'échantillon est introduit au sein d'une cellule de faible dimension équipé d'un hygromètre. Lorsque l'équilibre est atteint (plus de variation de masse), l'activité de l'eau est déterminée par la mesure de l'humidité relative de l'air à

l'intérieur de la cellule. L'opération est ensuite renouvelée pour une humidité d'air plus faible jusqu'à obtenir l'allure complète de l'isotherme de désorption.

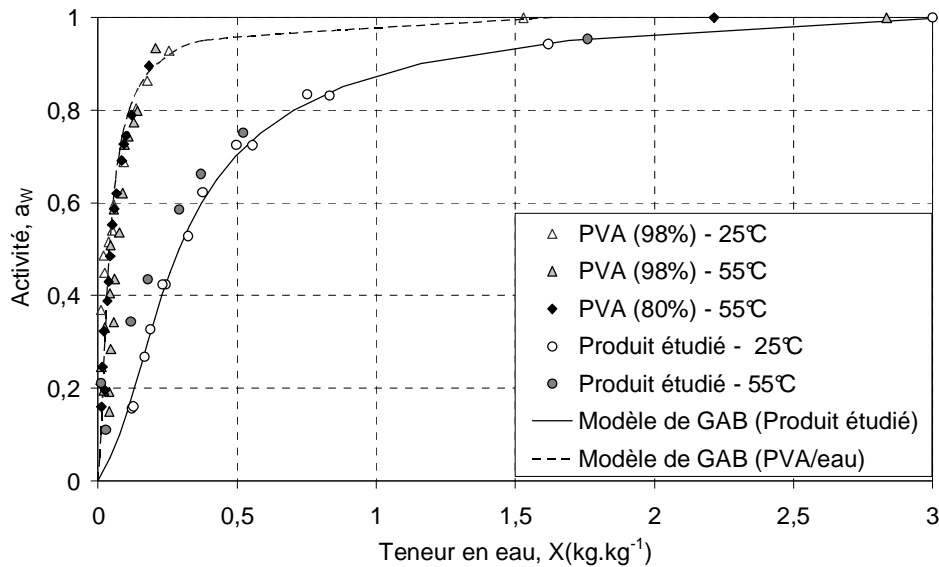


Figure 2-10 : Isothermes de désorption des différents produits

Comme le montre la Figure 2-10, l'activité du PVA(98%) et du PVA(80%) sont quasi-identiques et évoluent peu avec la température. Navarri qui étudie le séchage d'une enduction à base de PVA obtient une activité similaire [18]. Pour le produit étudié, l'activité diminue plus rapidement avec la teneur en eau et on note également le peu d'influence de la température. Cette figure montre en outre que le modèle de GAB (Eq. 1-7) permet une bonne représentation de l'activité. Les coefficients intervenant dans le modèle sont constants et sont donnés dans le Tableau 2-6.

	C	K	W_m
PVA (98%)	4,9328	0,9848	0,025
Produit étudié	2,2723	0,9382	0,1933

Tableau 2-6: Paramètres du modèle de GAB

La différence d'évolution entre le produit et le PVA s'explique par l'ajout de glycérol qui joue le rôle de plastifiant [68] au sein du produit étudié a tendance à retenir l'eau. En effet, si l'on suppose que le PVA et le glycérol n'ont pas d'effet l'un sur l'autre, l'activité du mélange aqueux peut être exprimée par la relation suivante [69, 70] :

$$\ln \gamma = \ln \gamma^{pva} + \ln \gamma^{glyc} \quad 2-48$$

où γ^{pva} et γ^{glyc} représentent respectivement les coefficients d'activation de l'eau en présence de PVA et de glycérol. La pression de vapeur d'eau en surface du produit s'écrit :

$$a_w = x_A \gamma \quad 2-49$$

avec x_A la fraction molaire de l'eau.

Le terme γ^{glyc} est calculé par la méthode de Wilson [69]. γ^{pva} est déduit des résultats expérimentaux. La Figure 2-11 montre que l'activité déduite de cette théorie est proche des résultats expérimentaux obtenus pour le produit étudié et aussi pour un mélange PVA(80%)/glycérol. Le faible écart observé s'explique par le fait que les mesures d'activité étant très longues (plusieurs jours), une partie du glycérol est évaporé, induisant une erreur de mesure notamment sur la masse sèche.

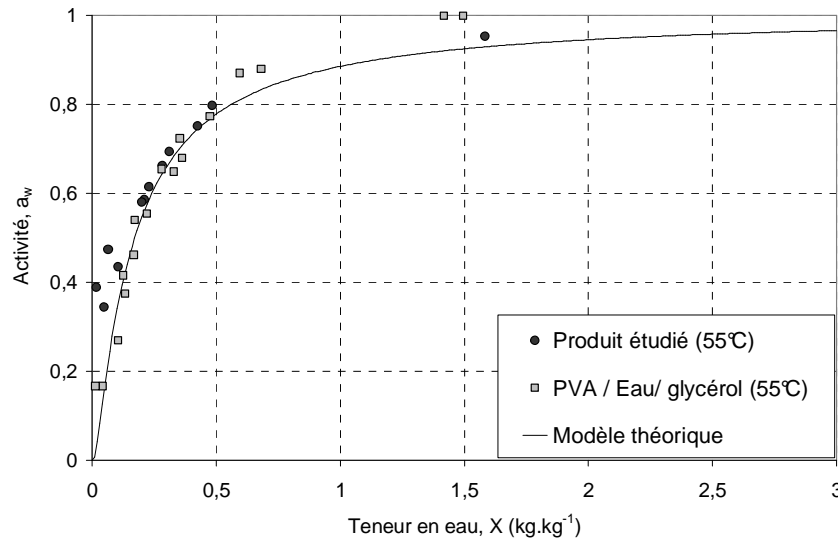


Figure 2-11 : Influence du glycérol sur l'activité

2.1.4 Cristallinité

Dans un polymère semi-cristallin, les cristaux ont tendance à limiter la diffusion de l'eau à travers le polymère. Ngui et al. [71,72,73] ont noté que le taux de cristallinité d'un polymère semi-cristallin en solution aqueuse augmente au cours du séchage et que cette augmentation se traduit par un frein à la migration de l'eau.

Une étude par analyse calorimétrique a été menée afin de déterminer le taux de cristallinité massique de l'alcool polyvinylique en solution aqueuse en fonction de sa teneur en eau. Pour cela, plusieurs échantillons de PVA ayant des teneurs en eau différentes ont été étudiés par DSC avec une vitesse de montée en température de 20°C/min et une plage de mesure allant de 20°C à 250°C. L'enthalpie du pic de fusion (ΔH) est comparée à l'enthalpie de fusion d'une solution de PVA pure qui serait totalement cristallisée et donnée dans la littérature ($\Delta H_\infty = 138,6 \text{ J.g}^{-1}$) [73]. Le taux de cristallinité massique (τ) se déduit par :

$$\tau = \frac{\Delta H}{\Delta H_\infty} \quad 2-50$$

La Figure 2-12 montre que le taux de cristallinité massique (τ) augmente effectivement considérablement lorsque la teneur en eau diminue.

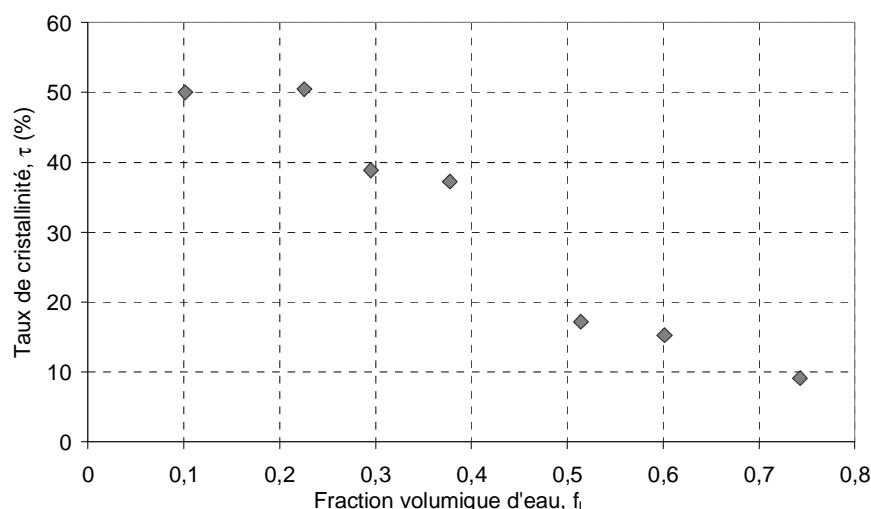


Figure 2-12 : Taux de cristallinité du système PVA/eau

2.1.5 Propriétés de la boîte de Pétri

La masse volumique de la boîte de Pétri en polystyrène (PS) a été déterminée grâce à la méthode de la fiole jaugée à 994 kg.m^{-3} . La conductivité thermique est donnée par le constructeur des boîtes et vaut $\lambda_b = 0,17 \text{ W.m}^{-1}.\text{°C}^{-1}$. La chaleur massique a été obtenue en fonction de la température par une analyse calorimétrique (Figure 2-13). Dans la suite, on considère une évolution linéaire avec la température :

$$C_{p,b} = 6,6 T + 2451 \quad \text{avec } T \text{ en } \text{°C} \quad \mathbf{2-51}$$

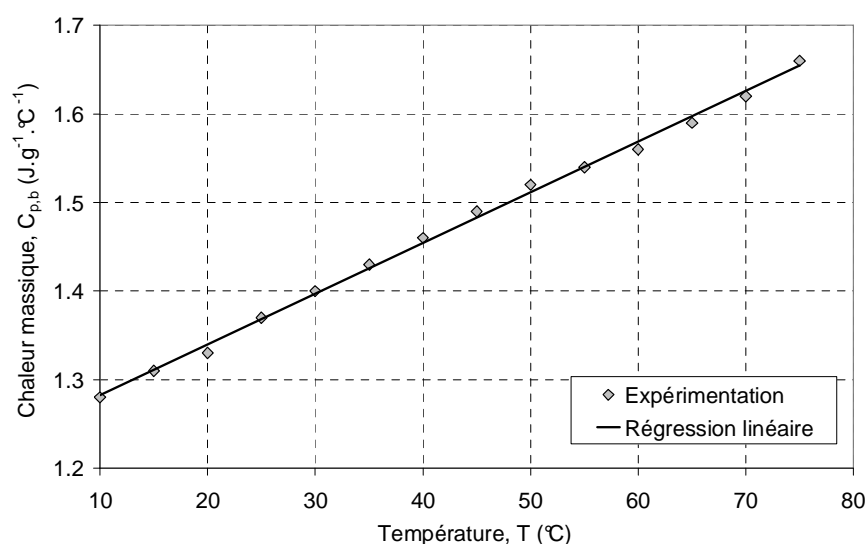


Figure 2-13 : Chaleur massique de la boîte de Pétri

La comparaison avec les propriétés de solutions pures d'alcool polyvinylique a montré que le taux d'hydrolyse de l'alcool polyvinylique a peu d'influence sur ses propriétés physiques. A l'inverse, les expérimentations réalisées ont permis de mettre

en avant l'influence du glycérol qui joue le rôle de plastifiant au sein du produit étudié notamment sur la masse volumique, la chaleur massique et l'activité du produit.

2.2 Dispositif expérimental

Les expériences de séchage ont été réalisées à l'aide d'un pilote de séchage développé au sein du laboratoire [16,74].



Figure 2-14: Dispositif expérimental

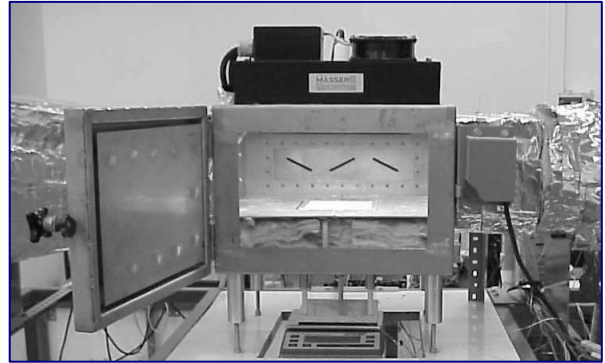


Figure 2-15 : Enceinte

L'enceinte dans laquelle est disposée le produit est associée à une boucle d'air chaud (Figure 2-16). Une batterie de préchauffage amène l'air à un premier niveau de température où les mesures d'hygrométrie et de vitesse sont réalisées. La vitesse d'air est mesurée grâce à un anémomètre à fil chaud. Un étalonnage préalable permet d'établir la correspondance entre les vitesses d'air dans la section de mesure et dans l'enceinte. L'humidité relative de l'air de séchage est mesurée grâce à un transmetteur doté d'une sonde. La température sèche est enregistrée en parallèle. Connaissant ces deux éléments, on peut en déduire la teneur en eau massique de l'air et donc l'humidité relative. Une deuxième batterie pilotée par un régulateur PID permet de contrôler la température d'air en entrée d'enceinte. A l'entrée de l'enceinte, un convergent et un carénage permettent de canaliser l'écoulement d'air sur la face supérieure de l'échantillon. La température d'air est relevée à l'entrée et la sortie de l'enceinte grâce à des thermocouples de type K.

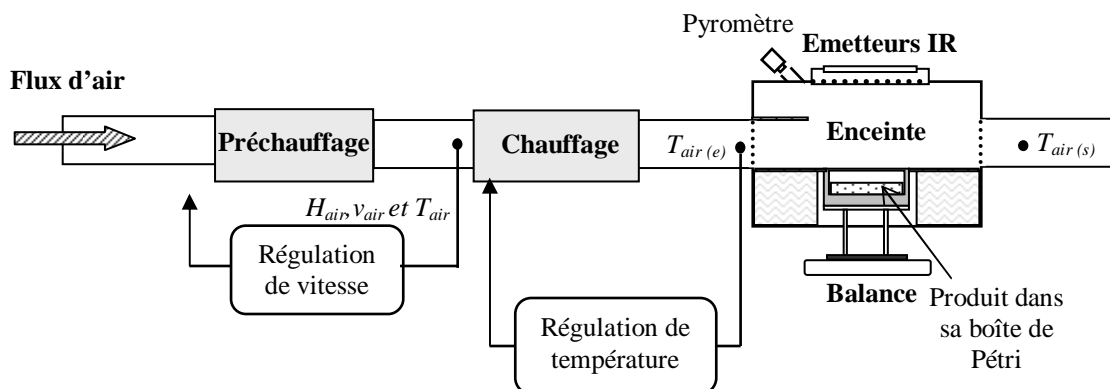


Figure 2-16 : Schéma de principe du pilote de séchage

Une cassette infrarouge constituée de deux émetteurs infrarouges courts et d'un ventilateur est placée sur la face supérieure de l'enceinte. La puissance nominale de chaque émetteur est de 1 kW. Cette puissance peut être modulée par le biais d'une unité à thyristors fonctionnant en angle de phase. Cet actionneur est commandé par un signal analogique.

Le dispositif expérimental ainsi que l'ensemble des transferts de masse et de chaleur sont schématisés sur la Figure 2-17. La boîte de Pétri, préalablement remplie, est placée au centre de l'enceinte sur un porte échantillon cylindrique en téflon. Pour limiter les échanges de chaleur entre le support et la boîte de Pétri, le porte échantillon est creux. L'ensemble est posé sur un trépied positionné sur un système de pesée. La boîte est placée en retrait par rapport au flux d'air. Un isolant thermique entoure la boîte de façon à limiter les échanges sur la surface latérale (condition adiabatique). De ce fait, les échanges de chaleur sous la boîte sont essentiellement dus à de la convection naturelle. Au cours du séchage, le produit est soumis en surface à de la convection forcée et peut recevoir un éclairage issu de la cassette infrarouge. Le produit et la face inférieure de la boîte échangent de la chaleur par rayonnement grande longueur d'onde avec l'enceinte. Au sein du produit, les échanges se font par diffusion et par conduction.

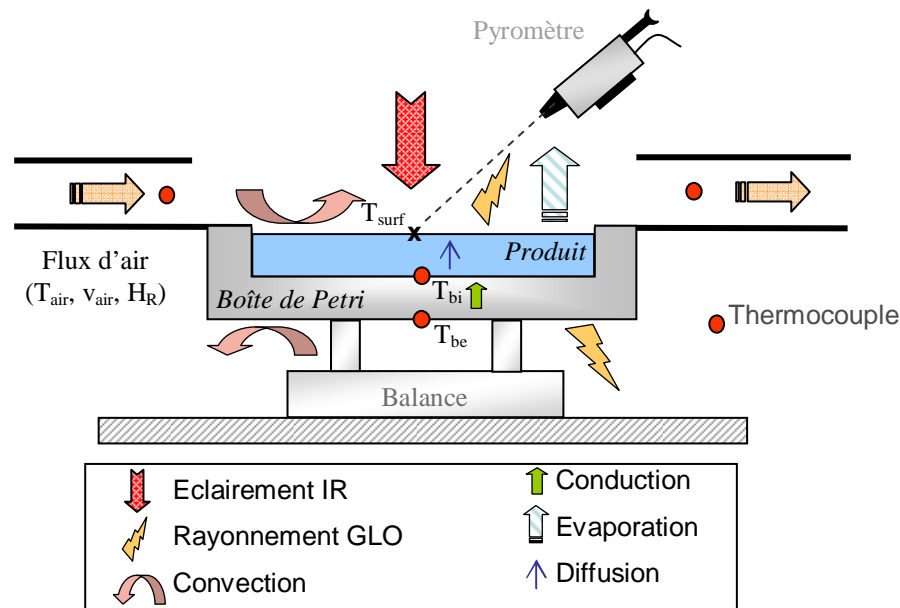


Figure 2-17 : Dispositif expérimental

La métrologie mise en place permet de suivre avec précision l'évolution au cours du séchage de la masse, des conditions aérauliques (humidité, vitesse et température d'air) et des températures de produit. Les températures au sein de la boîte sont relevées par des thermocouples de type K de diamètre $75\ \mu\text{m}$ (Figure 2-17). Un trou non débouchant est réalisé dans la boîte afin d'insérer un thermocouple donnant la température de la face intérieure (T_{bi}). Un deuxième thermocouple placé sur le dessous de la boîte donne la température sur la face extérieure (T_{be}). La température de surface (T_{surf}) est mesurée par le biais d'un pyromètre (bande spectrale : $8\text{-}14\ \mu\text{m}$)

qui délivre un signal analogique 4-20 mA avec un temps de réponse de quelques secondes. La métrologie utilisée ainsi que les incertitudes liées aux mesures sont données dans le Tableau 2-7.

Mesure	Type de capteurs	Plage de mesure	Précision
Température d'air	Thermocouple K	0 à 1100 °C	2-3 %
Humidité relative	Hygromètre	0 à 100 %	5 %
Vitesse d'air	Anémomètre	0 à 6 m s ⁻¹	0,2 m s ⁻¹
Température de surface matériau	Pyromètre optique	0 à 200°C	2-3°C
Température d'air	Thermocouple K	0 à 1100 °C	2-3 %
Masse de l'échantillon	Balance électronique	0,5 g à 3,2 kg	0,2 g

Tableau 2-7 : Plage et incertitude de mesures

La balance utilisée a une précision de 0,01 g. La Figure 2-18 présente des mesures à vide dans différentes conditions aérauliques détaillées dans le Tableau 2-8. On constate que le dispositif expérimental induit une incertitude de $\pm 0,2$ g.

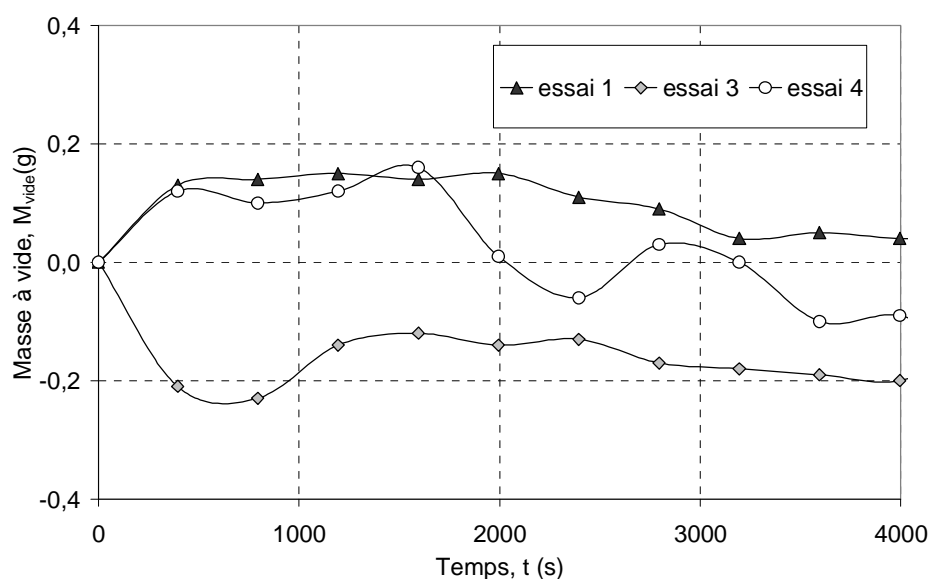


Figure 2-18 : Mesures à blanc de la masse

La densité de flux reçue par le produit a été mesurée à l'aide d'un capteur développé au laboratoire et est fonction de la tension appliquée (Figure 2-19). La distance produit - émetteurs est de 19 cm.

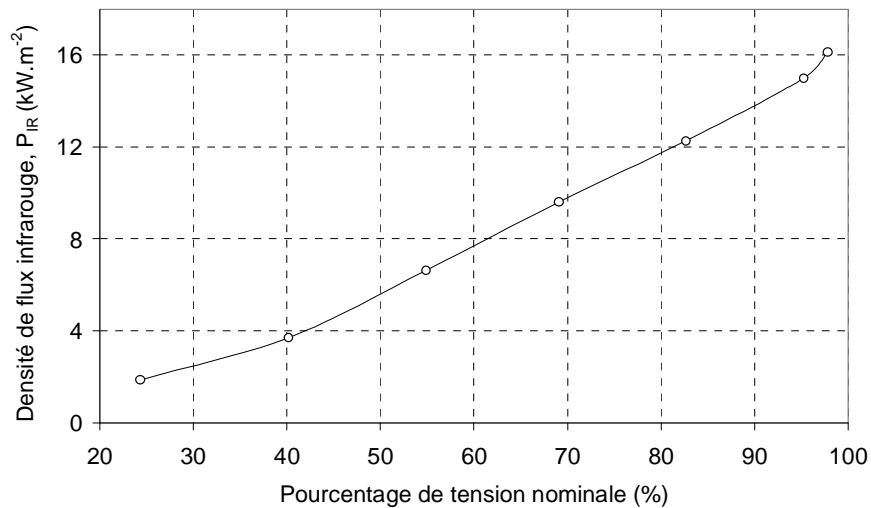


Figure 2-19 : Eclairage en fonction du signal de commande du bloc thyristor

L'ensemble des capteurs est relié à un boîtier de mesure qui effectue la conversion analogique-numérique des signaux. Il dispose de vingt canaux qui peuvent être utilisés pour des mesures de tensions, de courants ou de températures. Le pilotage des différents actionneurs s'effectue par le biais d'une carte à sorties analogiques munie de quatre canaux pouvant fournir une tension de 0 à 10 V. Une carte analogique/numérique permet de relier ces deux unités à un ordinateur. L'ensemble du système de commande et d'acquisition est schématisé ci-dessous. Il est géré par un programme développé en visual basic.

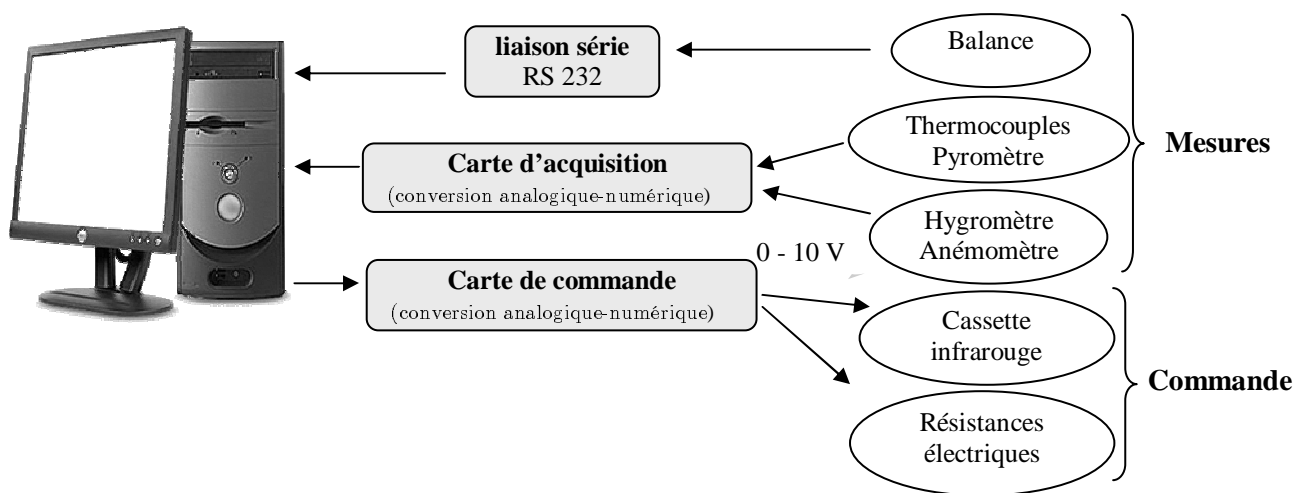


Figure 2-20 : Système d'acquisition et de commande

2.3 Essais en convection

De nombreux essais de séchage convectif ont été réalisés avec des vitesses d'air allant de 1 à 3 m.s⁻¹ et des températures d'air évoluant entre 35 et 55°C. Le Tableau 2-8 en donne la liste. La reproductibilité des essais a été vérifiée et seuls quelques essais types sont présentés.

Numéro d'essai	Type de Produit	v _{air} (m/s)	T _{air} (°C)	H _{air} (%)
1	Produit	1	35	30
2	Produit	1	55	12
3	Produit	2,8	35	35
4	Produit	2,8	55	12
5	Mélange eau/PVA	2,8	55	9
6	Mélange eau/PVA/glycérol	2,8	55	6

Tableau 2-8 : Récapitulatif des conditions d'essais en convection

2.3.1 Présentation d'un essai en convection

La Figure 2-21 donne les résultats obtenus en imposant une vitesse d'air de 2,8 m.s⁻¹ et une température d'air de 55°C (essai N°4). Durant cet essai, l'humidité de l'air de soufflage qui n'est pas contrôlée est sensiblement constante, environ 12%. La température d'air donnée est la température moyenne entre l'entrée et la sortie de l'enceinte.

Pour obtenir, le flux d'eau évaporé, il est nécessaire de réaliser un traitement numérique sur la dérivée de la masse afin de s'affranchir du bruit de mesure. Pour cela, après avoir effectué une moyenne glissante sur cinq points de la dérivée, un lissage est effectué par une fonction de la forme suivante :

$$F_m = \sum_{i=1}^n a_i t^i + a_{n+1} e^{-t} \quad 2-52$$

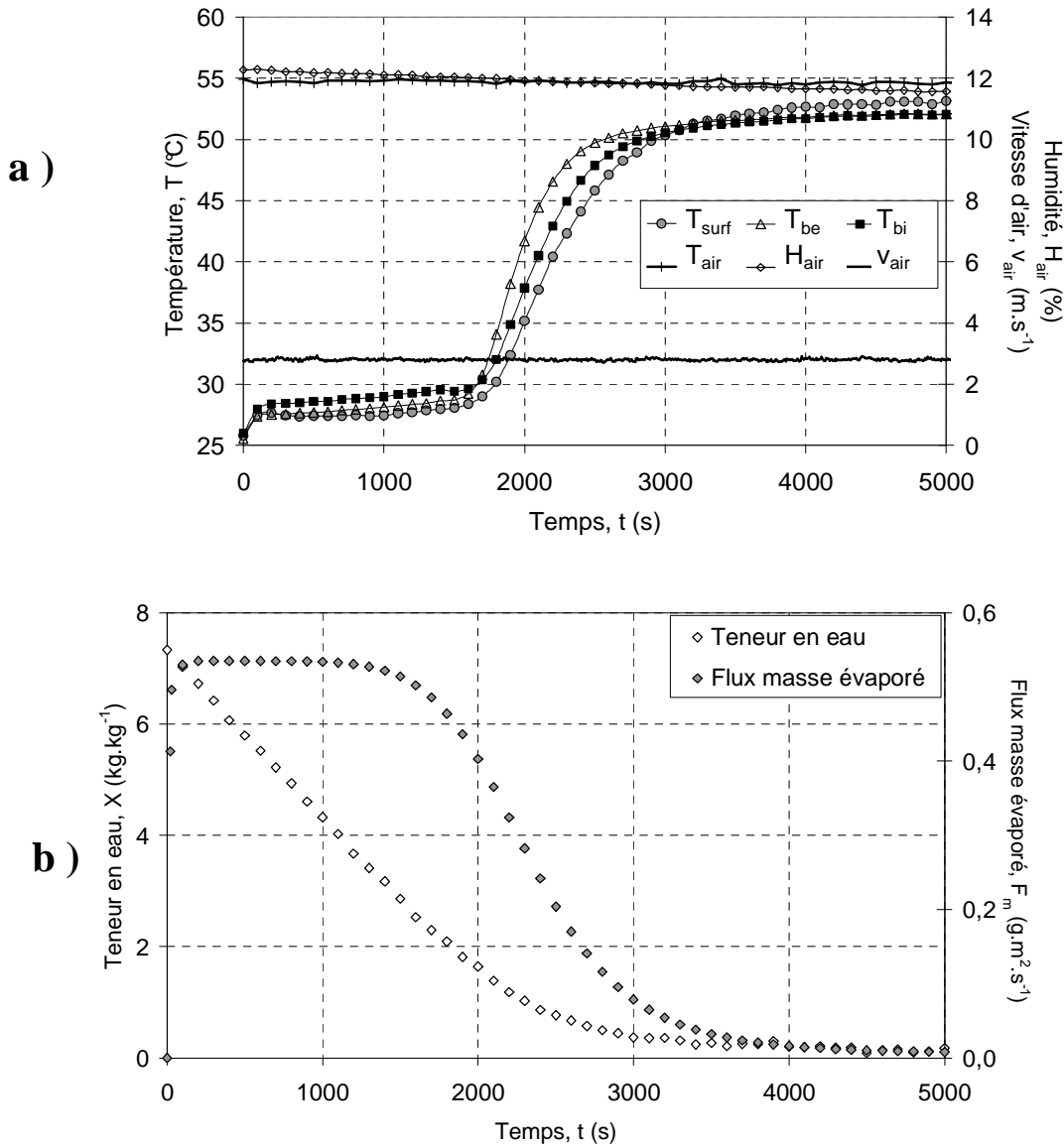


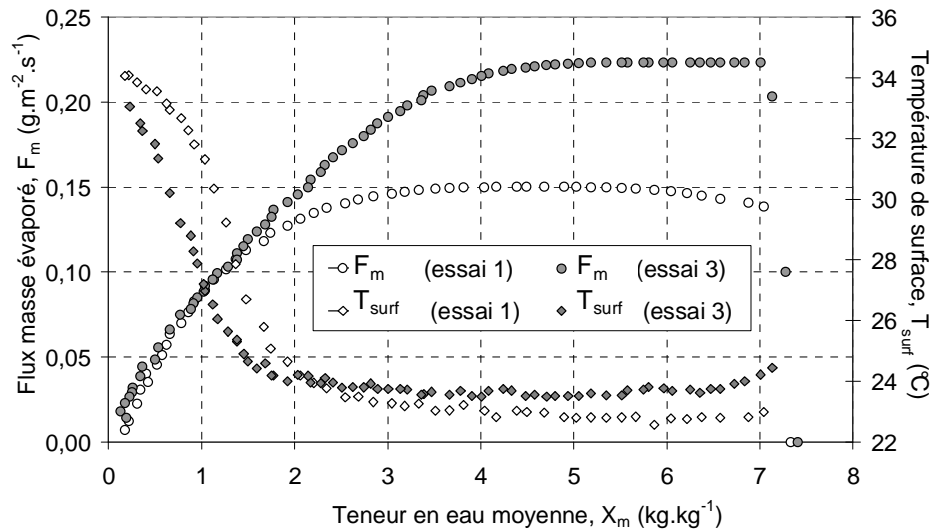
Figure 2-21 : Evolution des températures (a) et de la perte de masse (b) lors de l'essai convectif N°4 ($v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$ et $T_{\text{air}} = 55^\circ\text{C}$)

Dans un premier temps, la température du produit et le flux d'eau évaporé augmentent rapidement pour ensuite se stabiliser. La température de surface est légèrement supérieure à la température de bulbe humide (26°C). Cette différence de température s'explique par les échanges radiatifs de grandes longueurs d'ondes avec les parois de l'enceinte. Au sein de la boîte de Pétri, il n'y a pas de gradient significatif de température. En effet, la différence de températures entre la face intérieure (T_{bi}) et extérieure (T_{be}) de la boîte reste inférieure à 4°C . Cependant, à cause de l'évaporation, la température mesurée à la surface du produit est légèrement inférieure à la température de la boîte de Pétri. Ce régime dure ainsi environ 25 minutes. Ensuite, le flux d'eau évaporé décroît progressivement et toutes les températures tendent vers la température d'air. Ainsi, durant le séchage convectif, trois périodes peuvent être distinguées.

2.3.2 Influence des conditions aérauliques

2.3.2.1 Vitesse d'air

La Figure 2-22 présente les évolutions du flux masse d'eau évaporé et de la température de surface pour deux vitesses d'air respectivement de 1 m.s^{-1} et de $2,8 \text{ m.s}^{-1}$. La température d'air est imposée à 35°C . La vitesse d'air joue un rôle important notamment au début du séchage. En effet, l'augmentation de la vitesse d'air permet d'augmenter le coefficient d'échange par convection et donc, par conséquent, le coefficient de transfert de masse (Eq 1-5). D'après la relation 1-4, le flux d'eau évaporé est donc lui aussi plus important. Par contre, la Figure 2-22 montre que l'évolution de la température de surface est peu affectée par le choix de la vitesse d'air notamment pendant la phase isenthalpe où elle se stabilise à la température de bulbe humide.



**Figure 2-22 : Influence de la vitesse d'air ($T_{air} = 35^\circ\text{C}$)
 $v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ (essai 1) et $v_{air} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$ (essai 3)**

2.3.2.2 Température d'air

La Figure 2-23 met en avant l'influence de la température de l'air, mais également de l'humidité relative sur les cinétiques de séchage. En effet, dans le cas de notre expérimentation, l'hygrométrie n'étant pas contrôlée, lorsque la température augmente l'humidité relative, et donc la pression de vapeur de l'air, diminuent. En se référant à la relation (Eq 1-4) cela induit une augmentation du flux d'eau évaporé. Lors de la phase isenthalpe, la température du produit se stabilise à une température proche de la température de bulbe humide qui est de 21°C pour l'essai N°3 ($T_{air} = 35^\circ\text{C}$, $H_{air} = 35\%$) et de 26°C pour l'essai N°4 ($T_{air} = 55^\circ\text{C}$, $H_{air} = 12\%$). Enfin, la température augmente et ce d'autant plus rapidement que la température d'air est élevée.

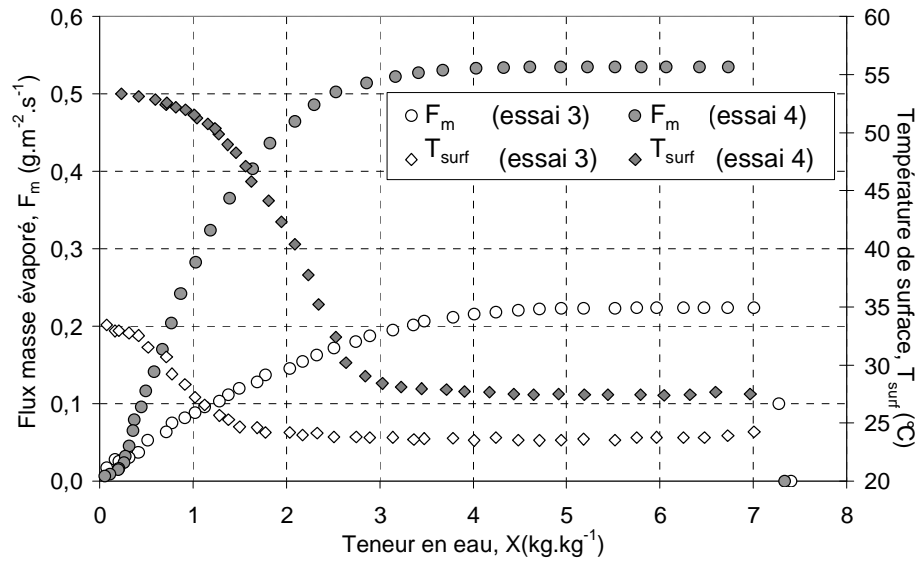


Figure 2-23: Influence de la température d'air ($v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$)
essai 3 : $T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$ et essai 4 : $T_{\text{air}} = 55^\circ\text{C}$

2.3.3 Comparaison de différentes compositions

Des essais de séchage convectif ont été réalisés avec trois produits différents. Le comportement de notre produit lors d'un séchage convectif est comparé à celui d'une solution pure d'alcool polyvinylique PVA(98%), et d'un mélange d'alcool polyvinylique PVA(80%), d'eau et de glycérol. Les différentes compositions n'ont pas tout à fait la même teneur en eau initiale du fait de la difficulté de leur fabrication.

Les évolutions du flux masse évaporé et de la température de surface des différentes compositions lors d'un essai convectif avec une température d'air de 55°C et une vitesse d'air de $2,8 \text{ m.s}^{-1}$ sont données sur la Figure 2-23. D'une façon générale, nous pouvons noter que le mélange PVA(80%)/eau/glycérol a un comportement proche du produit étudié. Pour la solution de PVA, le palier isenthalpe est très court. Pourtant, son activité d'après les résultats précédemment obtenus chute pour une teneur en eau plus basse (Figure 2-10). La teneur en eau en surface décroît donc plus vite que dans le cas du produit étudié et du mélange PVA(80%)/eau/glycérol. Ceci implique que la diffusion de l'eau est davantage limitée, certainement à cause d'un taux de cristallinité plus important. En effet, le glycérol présent dans le produit objet de cette étude a tendance à limiter la formation de cristaux [68, 75, 76]. Ainsi, la composition du mélange a donc une influence notoire sur les cinétiques de séchage.

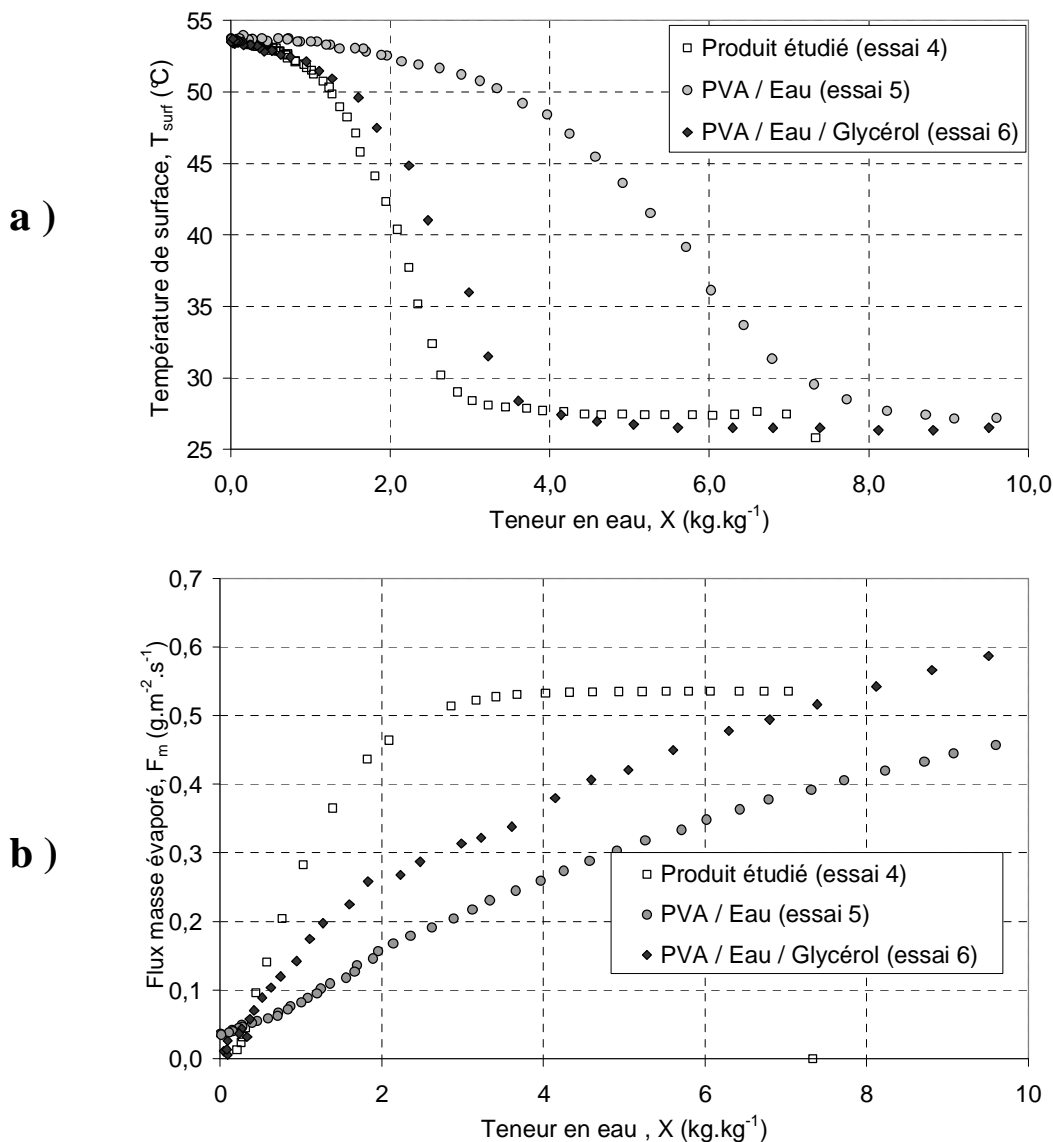


Figure 2-24 : Evolution de la températures de surface (a) et du flux d'eau évaporé (b) de différents mélanges lors d'essais convectifs ($v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$ et $T_{\text{air}} = 55^\circ\text{C}$)

2.4 Essais combinés convection-rayonnement

Diverses expériences ont été menées en associant à la circulation d'air un éclairage infrarouge. Dans un premier temps, des essais ont été réalisés avec un éclairage constant. Puis, plusieurs essais ont été menés en régulant l'éclairage infrarouge au cours du séchage. Cette démarche doit permettre de réduire le temps de séchage sans dépasser 90°C afin d'éviter les déformations de la boîte. La vitesse d'air fixée est faible ($v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$) et la température d'air est imposée à 35°C . Deux essais de séchage sont présentés et discutés (Tableau 2-9).

Numéro d'essai	Eclairement P_{IR} (kW.m ⁻²)	v_{air} (m.s ⁻¹)	T_{air} (°C)	H_{air} (%)
7	3,7	1	35	18
8	13,3 - 5,6	1	35	14

Tableau 2-9 : Conditions d'essais en convection et infrarouge (produit étudié)

2.4.1 Essai avec un éclairement infrarouge constant

La Figure 2-25 présente les cinétiques de séchage obtenues avec un éclairement infrarouge constant de 3,7 kW.m⁻². La température moyenne de l'air est de 37,5°C et l'humidité est proche de 18%. Au début, le flux masse évaporé augmente rapidement pour atteindre une valeur de 0,87 g.m⁻².s⁻¹. Durant une courte période, les températures restent quasiment constantes. L'éclairement infrarouge permet d'obtenir une température de surface (45°C) qui est très supérieure à la température de bulbe humide (19°C). Puis, les températures augmentent progressivement jusqu'à 80°C. A la fin du séchage, la température de l'ensemble est proche de la température maximale admissible (90°C). On constate que le gradient de température au sein de la boîte est faible tout au long du séchage. Durant cet essai, nous avons pu constater qu'à partir d'une teneur en eau moyenne de 3 kg.kg⁻¹, une peau se forme à la surface du produit. En effet, le polymère qui est de plus en plus concentré en surface a tendance à se plisser, et des stries se forment et s'agrandissent jusqu'à recouvrir totalement la surface.

Ainsi, une augmentation de l'éclairement infrarouge permet de diminuer le temps de séchage mais on risque alors d'atteindre des températures plus élevées. Le gain de temps se fait donc au détriment d'une bonne qualité du produit final. Aussi, pour améliorer le temps de séchage tout en évitant de détériorer le produit, il semble essentiel de bien maîtriser et de réguler l'éclairement infrarouge au cours du séchage. Le paragraphe présente les études réalisées avec cet objectif.

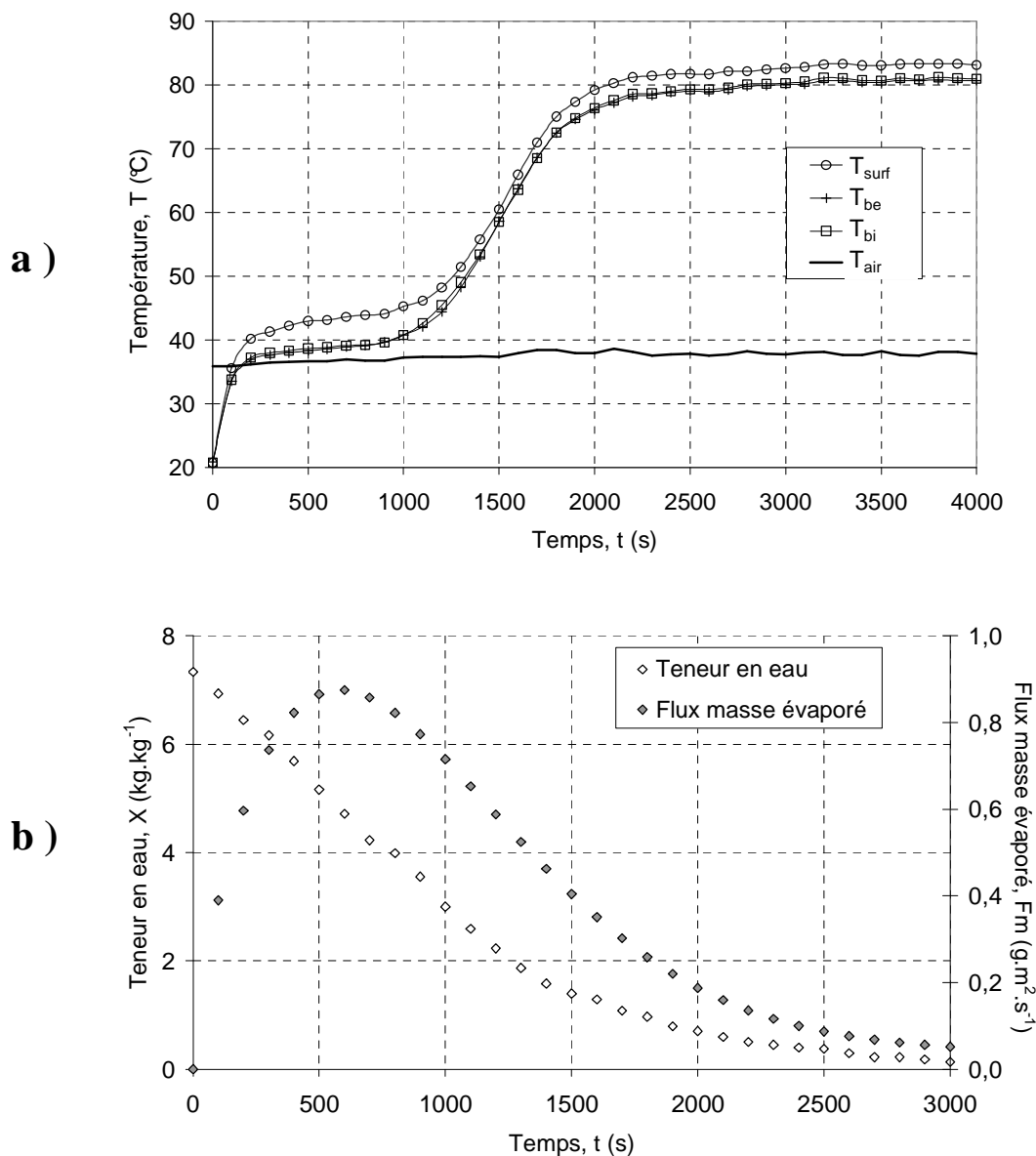


Figure 2-25 : Evolution des températures (a) et de la perte de masse (b) lors de l'essai infrarouge N°8 ($P_{IR} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

2.4.2 Essai avec un éclairage infrarouge variable

Plusieurs essais ont été effectués avec un éclairage infrarouge variable et un contrôle des températures du produit et de la boîte. L'éclairage infrarouge est, après quelques minutes, progressivement diminué par palier. L'éclairage infrarouge est ensuite régulé en fonction de la température de surface. Pour respecter ce critère, la source infrarouge est régulée en « tout ou rien ». Un exemple de l'évolution de la perte de masse et des températures de boîte et de produit obtenues selon ce protocole est donné sur la Figure 2-26.

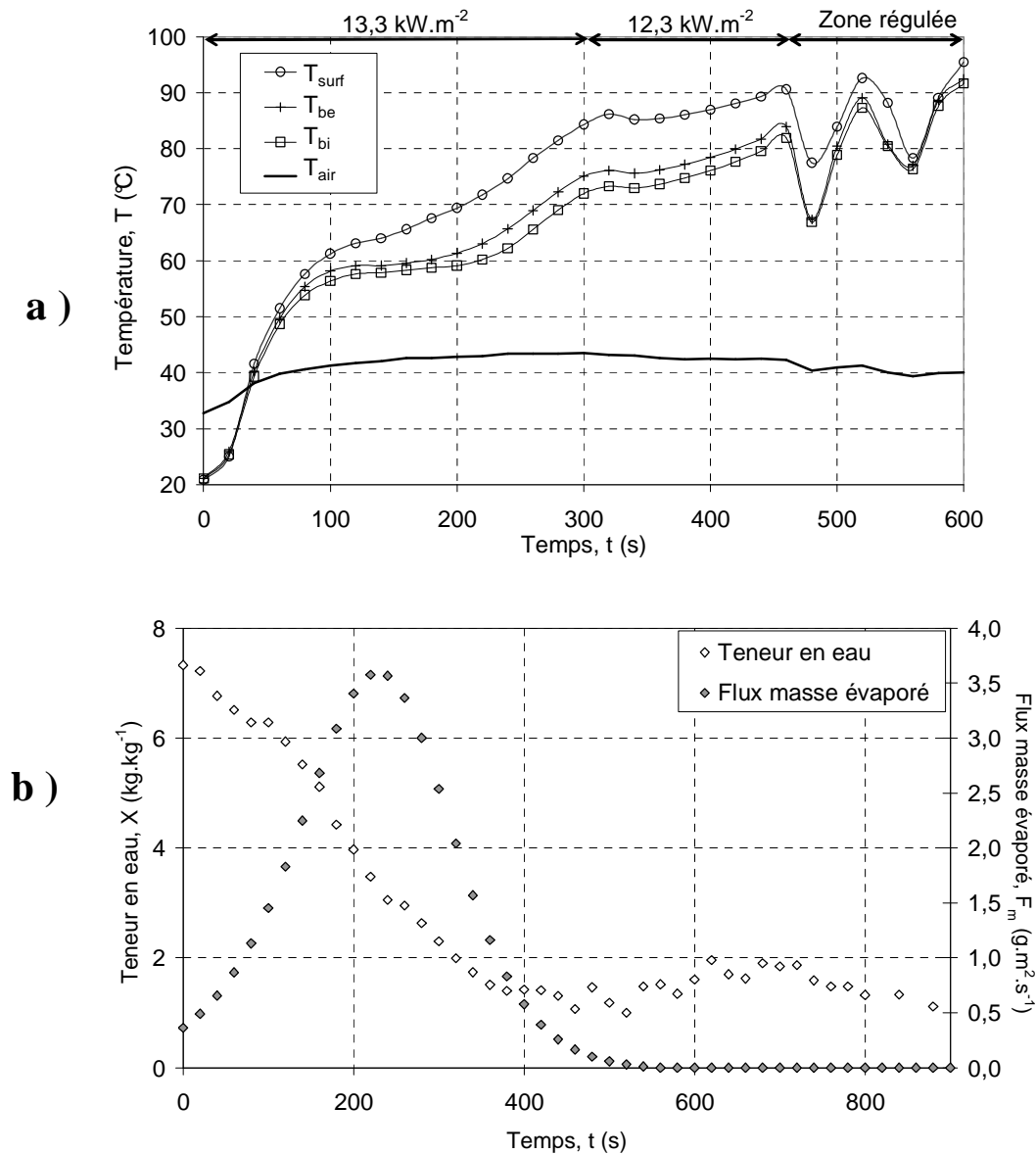


Figure 2-26 : Evolution des températures (a) et de la perte de masse lors de l'essai infrarouge N°9 (Eclairement variable)

L'éclairement infrarouge initial est de 13,3 kW.m⁻². Après cinq minutes, il est réduit à 12,3 kW.m⁻² et est ensuite régulé. Durant cet essai, la température d'air moyenne est de 40°C et l'humidité est proche de 14%. On aboutit ainsi à une valeur maximale du flux d'eau évaporé de 3,7 g.m⁻².s⁻¹ soit une vitesse de séchage environ quatre fois plus élevée que celle obtenue précédemment. Dans la première phase, le produit sèche donc plus rapidement qu'avec un faible éclairement infrarouge. Lorsque le flux masse évaporé commence à décroître, la température croît très rapidement vers la température maximale admissible de 90°C. Tout au long du séchage, la température de surface est supérieure de 4°C en moyenne à la température supérieure de la boîte de Pétri même si le gradient tend à être réduit à la fin à cause de la mise en place de la régulation de l'éclairement infrarouge. La différence entre la température intérieure et extérieure de la boîte de Pétri reste inférieure à 3°C.

Dans cet essai, l'apparition des stries est survenue au bout de 400 s. Elles ont très vite recouvert toute la surface limitant la diffusion de l'eau et piégeant l'eau au cœur du produit. Au bout de 600 s, même si le produit n'est pas entièrement sec ($X > 1 \text{ kg.kg}^{-1}$), il n'y a quasiment plus d'évaporation en surface (F_m est très faible). Cet exemple montre qu'en agissant sur l'éclairement infrarouge on peut diminuer le temps de séchage mais la contrepartie est la nécessité de bien définir la sollicitation afin d'obtenir une qualité de produit satisfaisante.

2.5 Comparaison des cinétiques en convection et en infrarouge

Les Figures 2-24 a et b présentent une confrontation des évolutions du flux d'eau évaporé et de la température de surface pour différents essais. Le Tableau 2-10 donne les temps de séchage obtenus en considérant une teneur en eau finale de $X = 1 \text{ kg.kg}^{-1}$.

Lors de l'essai réalisé avec une température d'air de 55°C et une vitesse d'air de $2,8 \text{ m.s}^{-1}$ en convection précédemment décrit, le flux masse évaporé atteint durant la phase isenthalpe $0,53 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Avec une vitesse d'air et une température d'air plus faibles ($v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $T_{air} = 35^\circ\text{C}$), il reste inférieur à $0,15 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Même si en agissant sur la vitesse d'air et la température d'air, on peut augmenter considérablement le flux masse évaporé, le temps de séchage reste relativement élevé (Tableau 2-10). Le flux d'eau évaporé lors des essais combinant convection et infrarouge est supérieur à ceux obtenus en convection seule et ce notamment avant que l'activité ne commence à chuter. Cependant, au cours du séchage, cet écart diminue. A la fin du séchage ($X < 1,5 \text{ kg.kg}^{-1}$), le flux masse évaporé lors de l'essai avec puissance infrarouge variable est plus faible que ceux obtenus lors des autres tests. La Figure 2-24 b montre que contrairement aux essais en convection où la teneur en eau finale est proche de la teneur en eau d'équilibre avec l'air humide ($0,1 - 0,25 \text{ kg.kg}^{-1}$), lors de cet essai à éclairage variable, la teneur en eau finale du produit qui est atteinte en 15 min est proche de 1 kg.kg^{-1} . En effet, comme nous l'avons vu précédemment, lorsque les sollicitations sont trop importantes, une peau se forme en surface empêchant le transfert de masse. Aussi, la régulation doit être améliorée de façon à éviter ce phénomène.

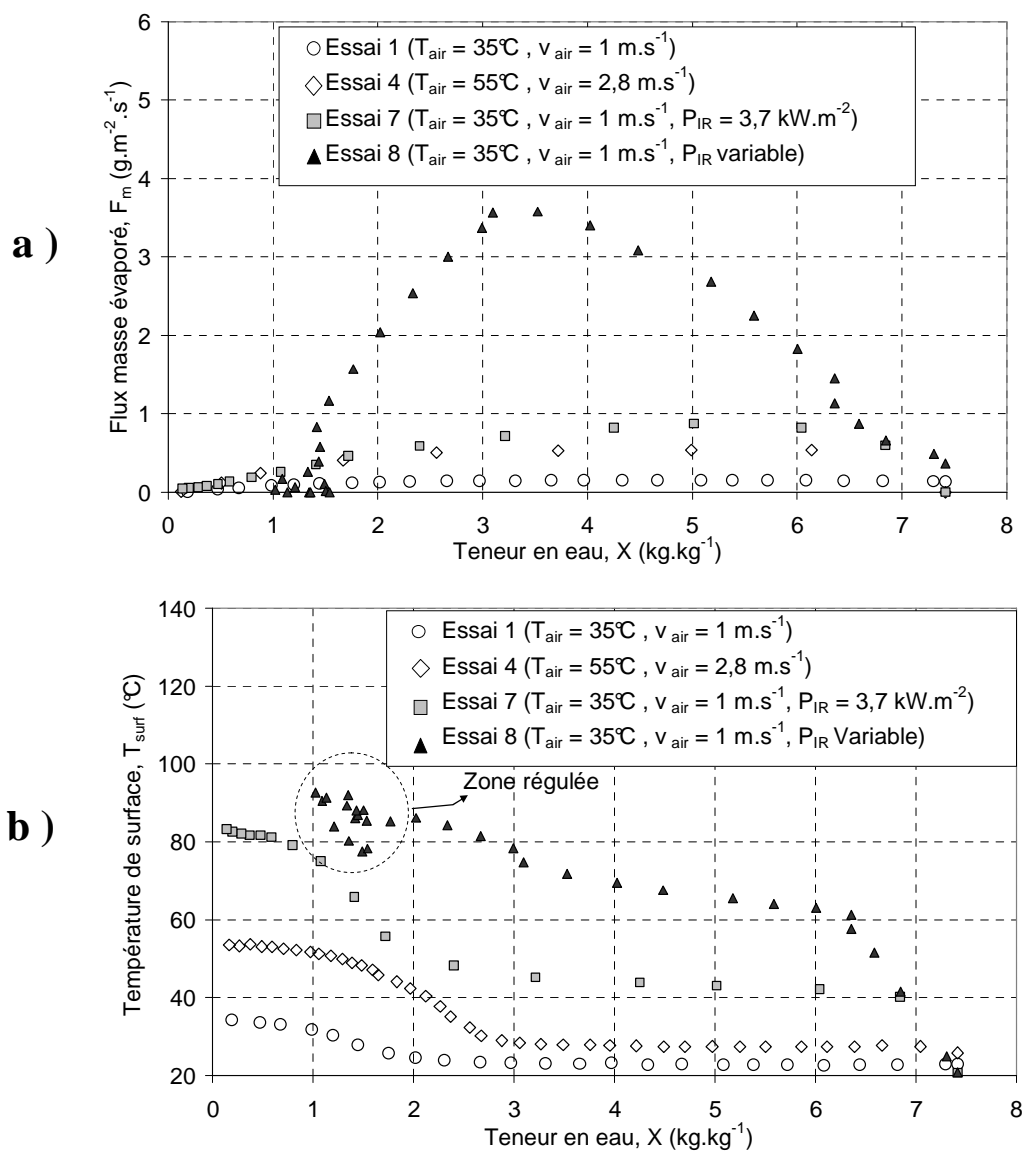


Figure 2-27 : Evolution du flux d'eau évaporé (a) et de la température de surface (b) en fonction de la teneur en eau moyenne lors des essais N° 1, 4, 7 et 8

	Essais convectifs		Essai N° 7	Essai N° 8
	N°1	N°4	($P_{IR} = 3.7 \text{ kW.m}^{-2}$)	(P_{IR} variable)
$v_{air} \text{ (m.s}^{-1}\text{)}$	1	2,8	1	1
$T_{air} \text{ (}^{\circ}\text{C)}$	35	55	35	35
$H_{air} \text{ (%)}$	30	11	20	17
Temps de séchage (min)	120	90	30	15

Tableau 2-10 : Temps de séchage des différents essais

Pour mieux comprendre ce phénomène surfacique, nous nous intéressons plus particulièrement dans cette partie à la teneur en eau de surface. En effet, en exploitant la relation 1-4, l'expérimentation nous donnant accès au flux masse évaporé, à la température d'air et à la température de surface du produit, il est possible connaissant le coefficient de convection de déterminer l'activité du produit et donc la teneur en eau en surface du mélange. La Figure 2-28 présente l'évolution de la température de surface en fonction de la teneur en eau de surface. Pour chaque essai, on constate que le produit monte fortement en température dès lors que la teneur en eau en surface du produit devient inférieure à $0,4 \text{ kg.kg}^{-1}$.

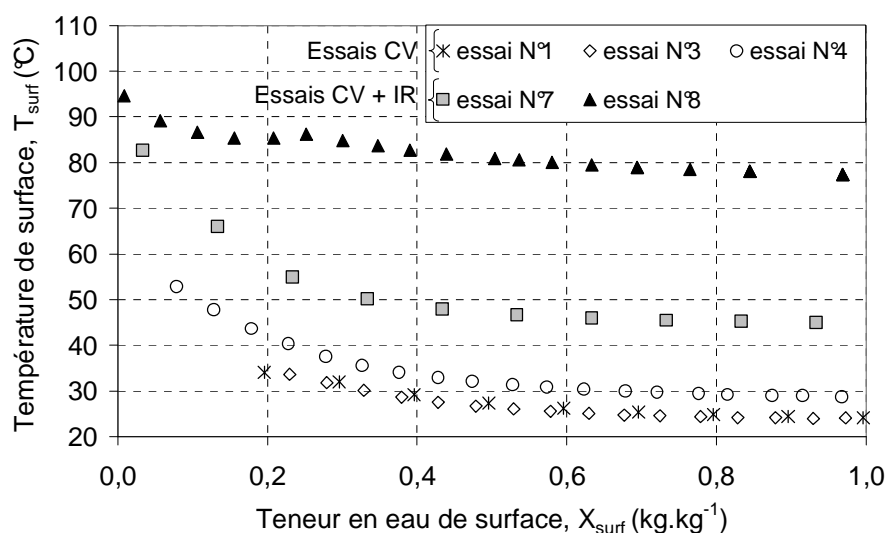


Figure 2-28 : Evolution des températures de surface en fonction de la teneur en eau de surface

L'évolution de la transition vitreuse du produit en fonction de sa teneur en eau est représentée sur la Figure 2-29. Pour chaque essai, on a reporté la température et la teneur en eau finale du produit. Lors du séchage convectif, la teneur en eau en surface est proche de la teneur en eau d'équilibre avec l'air ambiant et la température de surface reste supérieure à la température de transition vitreuse d'environ 20°C . En infrarouge (essais N°7 et N°8), la température de surface est supérieure en fin de séchage à la température de transition vitreuse de plus de 30°C . Même si ce calcul reste très approximatif compte tenu des incertitudes sur l'estimation de la teneur en eau de surface et sur la température de transition vitreuse, on suppose que la formation d'une couche imperméable en surface du produit observée lors des essais en infrarouge n'est pas une couche vitreuse.

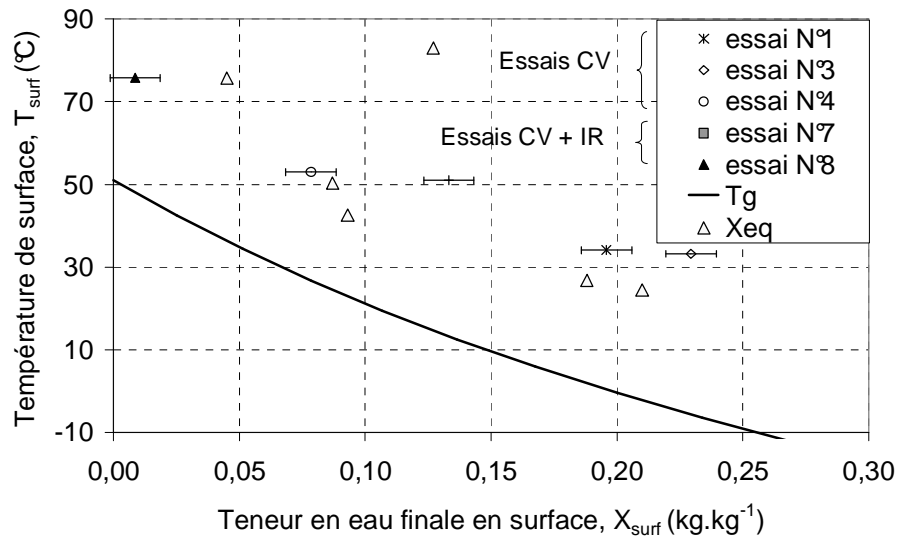


Figure 2-29 : Confrontation de la température de transition vitreuse et de la température de surface

Les essais de séchage qui ont été menés ont mis en avant l'efficacité d'un séchage combinant la convection à un apport infrarouge. Toutefois, il s'avère nécessaire de réguler les apports énergétiques afin d'éviter une détérioration du produit due à une température finale trop élevée. En effet, au cours du séchage, le produit a tendance à se strier. Ces stries se regroupent sous forme d'une peau imperméable rendant difficile la fin du séchage. Les cinétiques de séchage en convection obtenues vont à présent être utilisées afin de déterminer le coefficient de convection pour différentes vitesses de séchage et estimer un coefficient de diffusion effectif des différents mélanges. Une étude supplémentaire est menée afin de déterminer le coefficient d'absorption du produit au cours d'un séchage infrarouge.

2.6 Estimation de paramètres à partir d'essais en convection

2.6.1.1 Estimation du coefficient d'échange par convection

A la surface du produit, l'échange de chaleur s'effectue en convection forcée. Le produit étant placé à l'intérieur d'une boîte de Pétri, l'hypothèse d'une plaque plane pour lequel il existe des corrélations donnant le coefficient de convection est difficilement justifiable. C'est pourquoi, celui-ci est identifié à partir de plusieurs essais expérimentaux. En effet, d'après la relation 1-4, le flux masse évaporé dépend des températures de l'air et du produit ainsi que de l'activité du produit. L'estimation du coefficient de convection à l'interface air-produit peut donc se faire à partir des mesures réalisées en convection durant la phase isenthalpe pendant laquelle l'activité du produit vaut 1 (Figure 2-21). Les résultats obtenus pour quatre essais convectifs sont donnés sur la Figure 2-30. Pour une même vitesse d'air, et ce, même si l'humidité et la température d'air des essais sont différentes, les coefficients de convection identifiés sont très proches. Un coefficient de convection moyen est alors

estimé pour $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ à partir des essais 1 et 2 puis pour $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$ à partir des essais 3 et 4. Les valeurs obtenues sont données dans le Tableau 2-11.

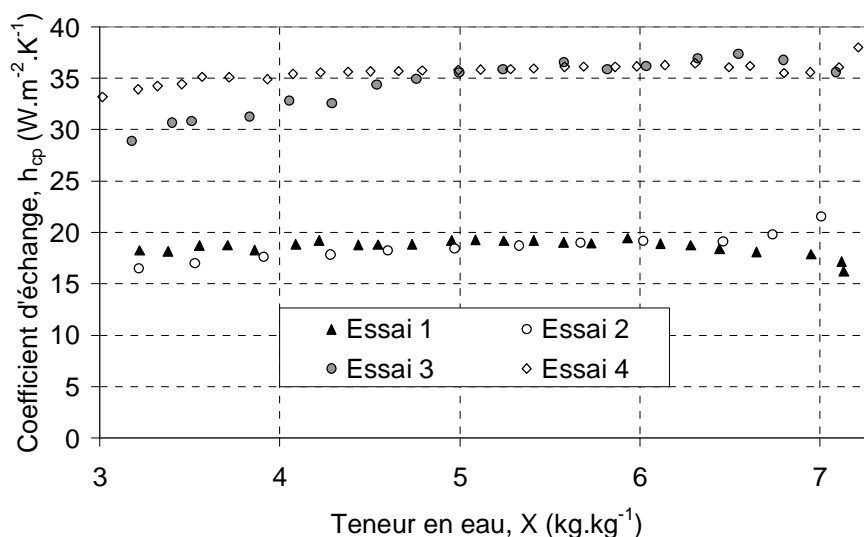


Figure 2-30 : Coefficient de convection en surface du produit

$v_{\text{air}} \text{ (m.s}^{-1}\text{)}$	1	2,8
$h_{\text{cp}} \text{ (W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}\text{)}$	19	36

Tableau 2-11: Coefficient de convection

Des essais complémentaires ont été réalisés afin de voir l'influence des parois de la boîte. Les boîtes de Pétri utilisées ont une hauteur de 1,3 cm et à l'instant initial, le produit a une épaisseur de 1,3 mm. Des essais ont donc été menés en utilisant une boîte de Pétri ayant une hauteur de paroi réduite (0,5 cm). On aboutit alors à des valeurs plus importantes du coefficient d'échange ($h_{\text{cp}} = 21 \text{ W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}$ pour $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et à $h_{\text{cp}} = 39 \text{ W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}$ pour $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$). Ces essais montrent d'une part la sensibilité de l'approche mais également qu'au cours du séchage le coefficient d'échange par convection doit évoluer puisque le produit passe de 1,3 mm à une épaisseur finale d'environ 0,15 mm.

2.6.1.2 Estimation du coefficient de diffusion

En effet, lorsque la diffusion de l'eau dans le polymère est suffisamment importante, la concentration dans l'ensemble du produit reste relativement homogène. A l'inverse, si le coefficient de diffusion est très faible, la perte d'eau en surface liée à l'évaporation n'est pas compensée par les apports internes et un gradient de concentration apparaît au sein du produit. Comme nous l'avons vu

précédemment (chapitre 1), il est possible à partir des cinétiques obtenues en convection et de la solution analytique de l'équation de Fick, d'estimer un coefficient de diffusion effectif. Celle-ci peut s'appliquer si l'épaisseur du produit est constante, si le système a une température homogène et si le coefficient de diffusion est constant.

Dans notre cas, l'épaisseur du produit diminue au cours du séchage. Toutefois, dans une étape préliminaire, nous avons exploité cette approche en supposant que l'épaisseur ainsi que le coefficient de diffusion sont constants sur de courts intervalles de temps afin d'obtenir un ordre de grandeur du coefficient de diffusion. Sur ces différents intervalles, l'effet de la température et du retrait sur le transfert de masse est négligé. L'équation 1-26 est résolue par une méthode pas à pas à l'aide d'une procédure d'optimisation. L'épaisseur est déduite de l'évolution expérimentale de la masse

La Figure 2-31 donne les valeurs obtenues pour l'essai 1 ($v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $T_{air} = 35^\circ\text{C}$) et l'essai 4 ($v_{air} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$ et $T_{air} = 55^\circ\text{C}$) dont les vitesses et les températures d'air sont différentes. Le coefficient de diffusion décroît avec la teneur en eau de plus d'une décade alors qu'il augmente avec la température. Dans la première phase du séchage, nous obtenons des valeurs comprises entre 10^{-10} et $10^{-11} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, ce qui est conforme à la littérature [4, 11].

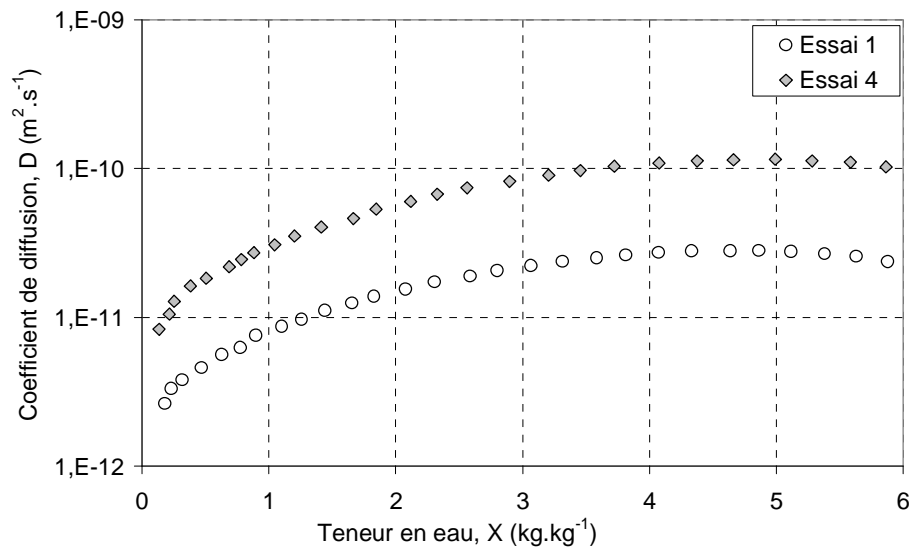


Figure 2-31 : Evolution du coefficient de diffusion effectif lors des essais N°1 ($v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{air} = 35^\circ\text{C}$) et N°4 ($v_{air} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{air} = 55^\circ\text{C}$)

La Figure 2-32 compare le coefficient de diffusion obtenu par cette méthode pour les différents mélanges étudiés (essais N°4, 5 et 6). L'évolution du coefficient de diffusion pour les trois compositions est similaire. Le coefficient du produit étudié est légèrement supérieur notamment en fin de séchage aux coefficients de diffusion des deux solutions de PVA.

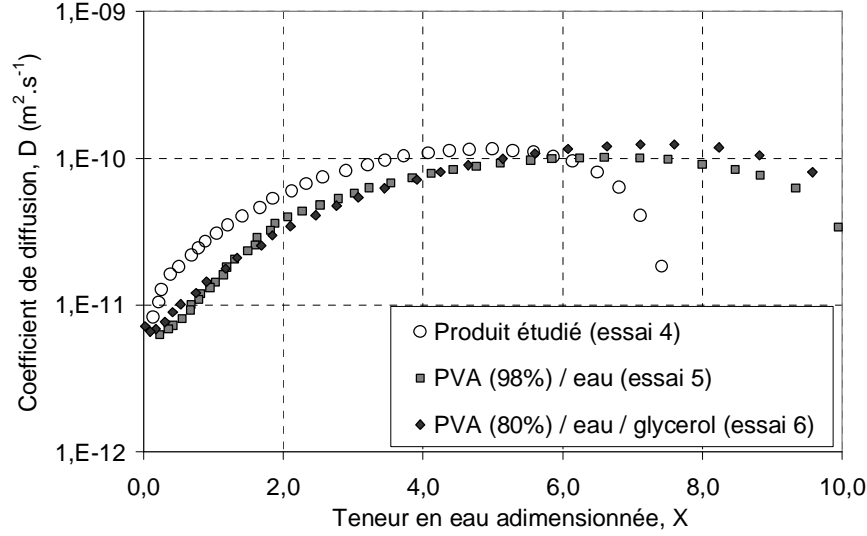


Figure 2-32 : Evolution du coefficient de diffusion pour différentes compositions du mélange

Le nombre de Peclet massique qui s'écrit en fonction du coefficient de diffusion, de l'épaisseur et du flux masse évaporé (Eq 2-53) permet de faire le lien entre les phénomènes diffusifs et l'évaporation [77, 78].

$$P_e = \frac{eF_m}{\rho D} \quad 2-53$$

Pour les différents essais réalisés en convection, le nombre de Peclet reste très supérieur à 1. La diffusion de l'eau dans le polymère est donc trop faible pour avoir une concentration uniforme dans le produit. Ciampi et McDonald [77] précisent que dans ce cas, la couche surfacique peut devenir vitreuse et définissent alors un temps caractéristique du passage à l'état vitreux fonction de la fraction de polymère.

2.7 Propriétés radiatives

Lors des essais en infrarouge, le comportement du produit dépend de ses propriétés radiatives ainsi que du spectre d'émission des émetteurs. En assimilant le filament à un corps noir à la puissance nominale de 1 kW, il est porté à une température d'environ 2200°C. Selon la loi de Wien [35], la longueur correspondant au maximum d'émission est alors de 1,17 µm. Lors de nos essais, les émetteurs sont pilotés par angle de phase [74]. Les filaments sont donc portés à une température inférieure à leur température nominale, ce qui signifie que leur spectre d'émission est décalé vers l'infrarouge moyen. La température d'émission dépend alors de la tension efficace (U). En considérant que la puissance est dissipée uniquement par rayonnement (pas de convection, pas de pertes par conduction,...), on pose l'approximation suivante :

$$P_{elec} = \frac{U^2}{R} = \gamma T^4 \quad 2-54$$

$$\text{d'où} \quad T = \left(\frac{U^2}{\gamma R} \right)^{1/4} \quad 2-55$$

La résistivité électrique des filaments est supposée constante.

Sachant que la température nominale des émetteurs correspond à une tension de 220 V, on en déduit le coefficient $\gamma R = 1,25 \cdot 10^{-9} \text{ V}^2 \cdot \text{T}^{-4}$. La Figure 2-33 donne l'évolution de la température des émetteurs en fonction du pourcentage de tension appliquée.

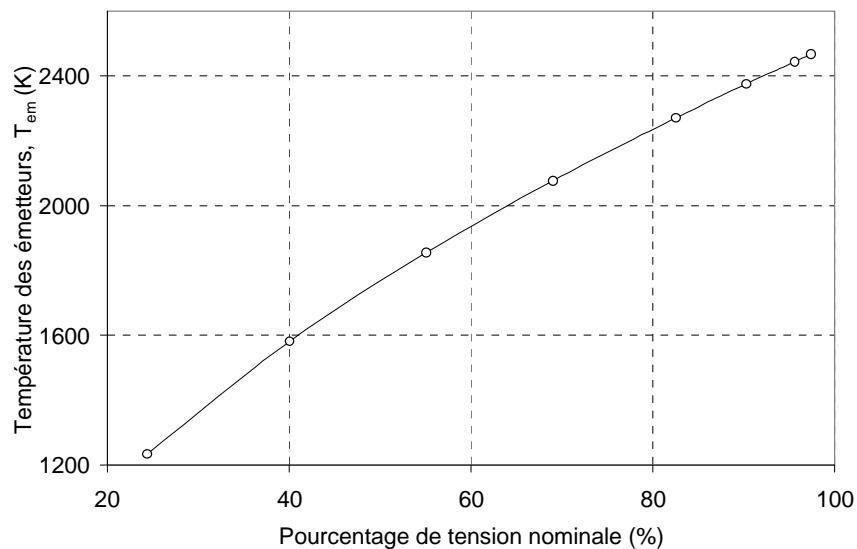


Figure 2-33 : Température d'émission des émetteurs infrarouges

Le spectre d'émission adimensionné des émetteurs infrarouges émettant à une température de 2000 K est présenté sur la Figure 2-34. L'évolution du coefficient de transmission du produit étudié avec une épaisseur de 1,3 mm est aussi représenté. Ces mesures ont été obtenues à l'aide d'un spectromètre FTIR et sont comparées au spectre d'absorption de l'eau.

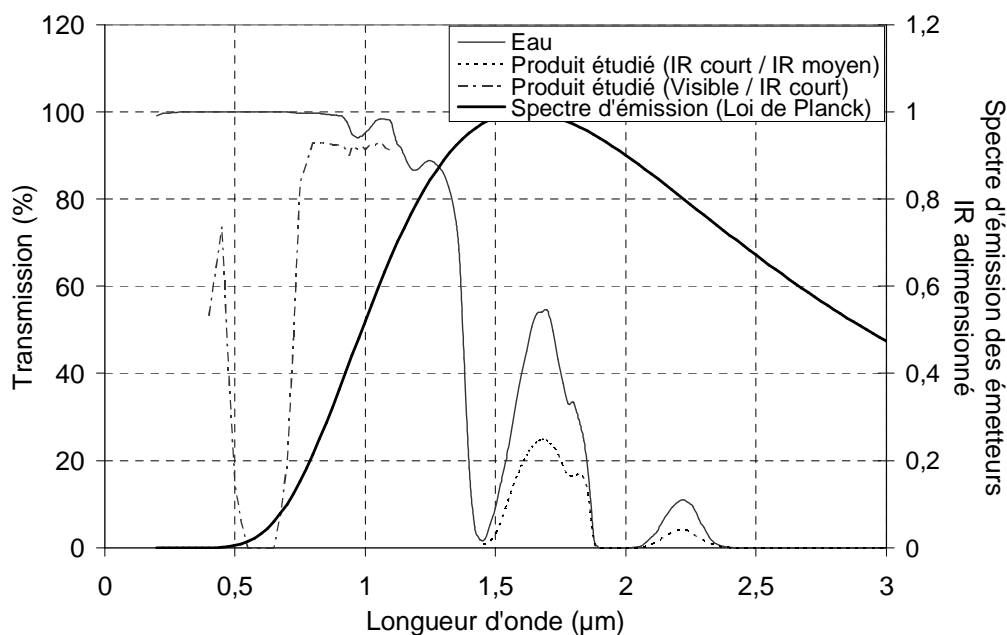


Figure 2-34 : Spectre d'émission des émetteurs et spectre d'absorption du produit industriel

Le produit étudié est un milieu semi-transparent à émission et réflexion diffuse. Au cours du séchage, la transmittivité équivalente du produit est exprimée comme une fonction de l'épaisseur et donc de la teneur en eau moyenne.

$$\tau = \tau_B e^{-\kappa_A (e - e_s)} \quad 2-56$$

où τ_B et κ_A sont respectivement la transmittivité du produit sec et le coefficient d'extinction de l'eau.

Les mesures FTIR réalisées permettent de déterminer les valeurs du coefficient d'extinction de l'eau et celui du produit sec en fonction du spectre d'émission des émetteurs. Les valeurs obtenues sont données en fonction du pourcentage de tension de commande des émetteurs sur la Figure 2-35. On constate que plus le spectre est décalé vers l'infrarouge moyen (pourcentage faible), plus les coefficients d'extinction de l'eau et du produit sec sont élevés.

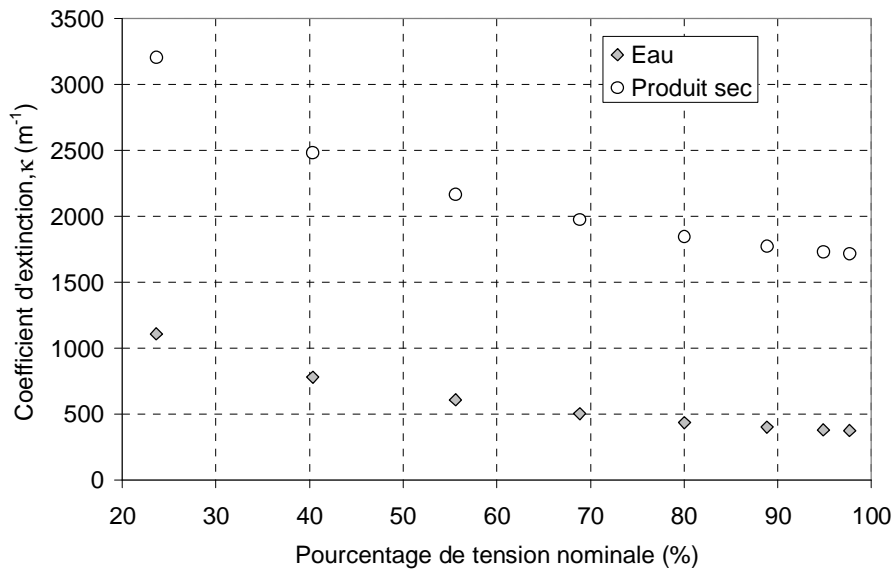


Figure 2-35 : Coefficients d'extinction

En parallèle, le coefficient de transmission a été déterminé au cours de deux expériences de séchage avec des éclairagements respectivement de $3,7 \text{ kW.m}^{-2}$ et de $5,6 \text{ kW.m}^{-2}$. Dans ces deux cas, la température d'émission des émetteurs est respectivement de 1600 K et de 2000 K. La Figure 2-36 présente l'évolution de la transmittivité obtenue en mesurant le flux reçu et transmis par l'ensemble « boîte de Pétri + produit » au cours des deux essais. Le coefficient d'extinction de la boîte a été estimé ($\kappa_b = 265 \text{ m}^{-1}$). Au début, le produit absorbe environ 60% du flux infrarouge qu'il reçoit. Puis, du fait de l'évaporation en surface, la composition du produit change et l'épaisseur du produit diminue. La part de rayonnement absorbée diminue alors progressivement jusqu'à ce qu'au final, le produit n'en absorbe plus que 15%, ce qui est moins que la part absorbée par la boîte de Pétri estimée à 20%. Pour les deux essais présentés, tant que la teneur en eau est supérieure à $0,2 \text{ kg.kg}^{-1}$, il existe un bon accord entre les mesures ainsi obtenues et la transmittivité déduite de la relation (2-56). En fin de séchage par contre, les mesures laissent apparaître un

coefficient de transmission plus important que prévu. Cette différence est due principalement à un séchage non homogène du produit. En effet, le produit a tendance à s'accumuler sur les bords de la boîte, ce qui se traduit par une épaisseur de produit au centre de la boîte plus faible et donc une transmissivité plus importante.

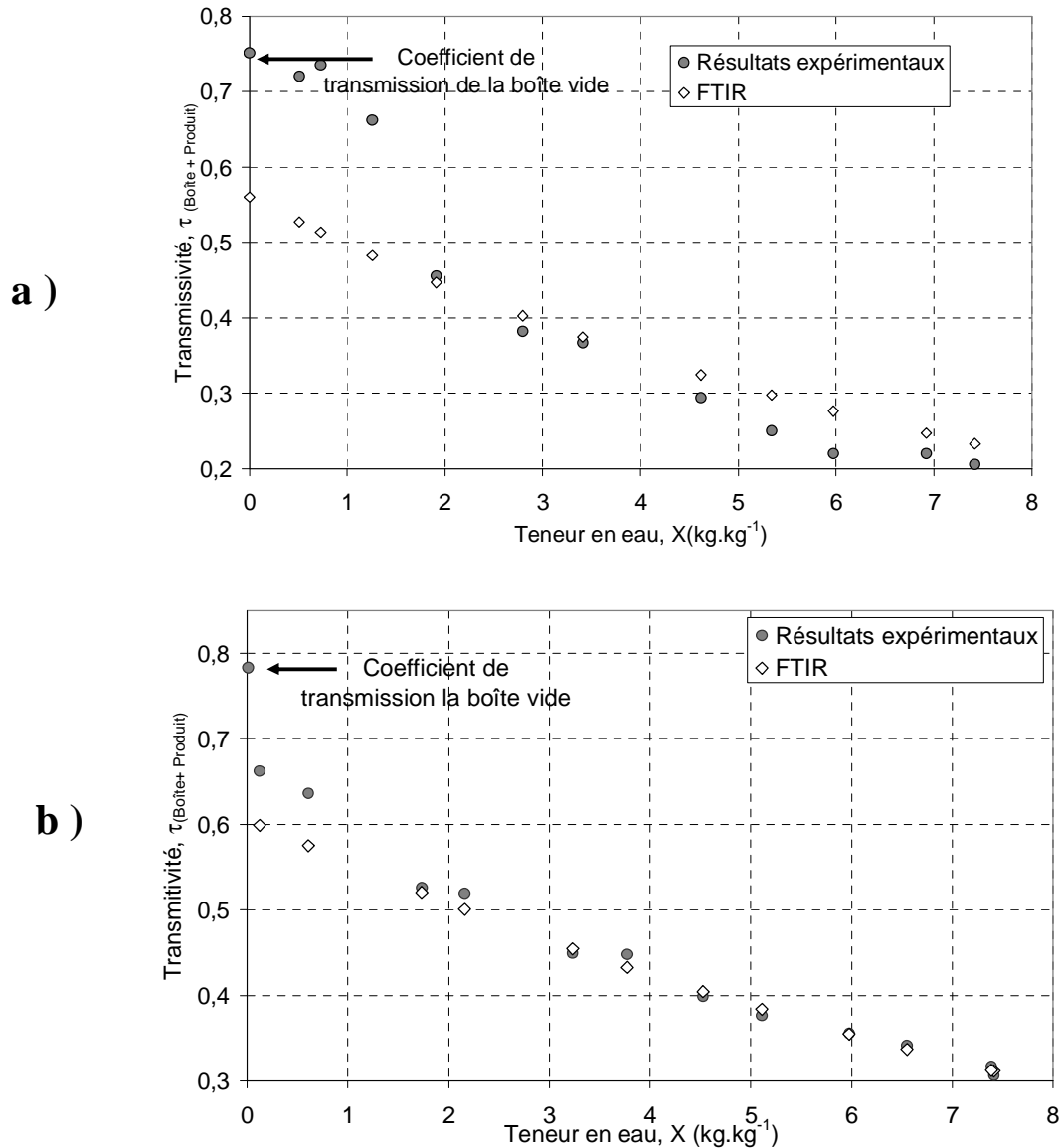


Figure 2-36 : Evolution du coefficient de transmission du produit étudié
a - $P_{IR} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$ (40% de la tension nominale)
b - $P_{IR} = 5,6 \text{ kW.m}^{-2}$ (55% de la tension nominale)

Enfin, à défaut de n'avoir pu le mesurer, nous considérons dans la suite de cette étude que la valeur du coefficient de réflexion du produit est proche de celle de l'eau (1%) [10,18].

2.8 Conclusion

Les essais menés ont montré que le séchage combinant convection et infrarouge semble une solution bien adaptée au séchage de solutions polymère. Toutefois, une régulation de l'éclairement infrarouge est nécessaire pour éviter une détérioration du produit. L'exploitation des cinétiques de séchage en convection, nous a permis à partir de la solution analytique de l'équation de Fick d'estimer un coefficient de diffusion effectif. Les propriétés radiatives du polymère ont pu être estimées. L'ajout de plastifiant au sein du mélange a permis d'abaisser la température de transition et une influence significative sur les propriétés du mélange. Pour bien appréhender le comportement du produit au cours du séchage, un modèle de connaissance doit donc être développé.

Chapitre 3

Modélisation et Simulation

Dans ce chapitre, les équations régissant les transferts de masse et de chaleur ainsi que les conditions aux limites retenues sont présentées. Deux approches mathématiques sont décrites pour prendre en compte le retrait du produit lors du séchage. L'objectif est de développer un modèle permettant de décrire le comportement du produit lors d'un séchage convectif et combiné « convection-infrarouge ». Pour cela, plusieurs essais de simulation sont menés afin de valider les hypothèses retenues pour le modèle et obtenir des temps de calcul satisfaisants. La bonne représentation des cinétiques de séchage passe par la connaissance du coefficient de diffusion, qui est estimé dans ce chapitre par méthode inverse à partir de cinétiques de séchage en convection. Enfin, les résultats expérimentaux sont confrontés aux simulations afin de valider le modèle développé.

3.1 Equations relatives aux transferts de masse et de chaleur

Les transferts de masse et de chaleur sont supposés unidirectionnels selon l'épaisseur du produit. Par ailleurs, l'élimination de l'eau se traduit par une diminution de l'épaisseur qui est reliée à la teneur en eau moyenne par la relation linéaire (Eq. 1-9).

Dans un système multi-composant, les constituants se déplacent à des vitesses différentes [9]. La vitesse moyenne du mélange (vitesse de référence du système) est alors une fonction de la vitesse de chacun des constituants.

Pour s'affranchir des difficultés de résolution liées au retrait de la matière, la solution envisagée est un changement de repère.

Deux approches sont proposées et comparées :

- Dans le cas où **la vitesse de référence choisie est une vitesse volumique moyenne**, les transferts de masse et de chaleur peuvent être exprimés en fonction de la fraction volumique des constituants. On se ramène alors à un repère fixe compris entre 0 et 1 par une transformation de Landau [3, 11].
- Pour **une vitesse de référence barycentrique**, les transferts de masse et de chaleur peuvent être exprimés en fonction de la teneur en eau. Un repère lagrangien lié au soluté (produit sec) permet de s'affranchir du calcul de la vitesse de déplacement du soluté [4, 18].

Les différents repères introduits dans cette étude et les variables spatiales qui leur sont associés sont décrits sur la Figure 3-37.

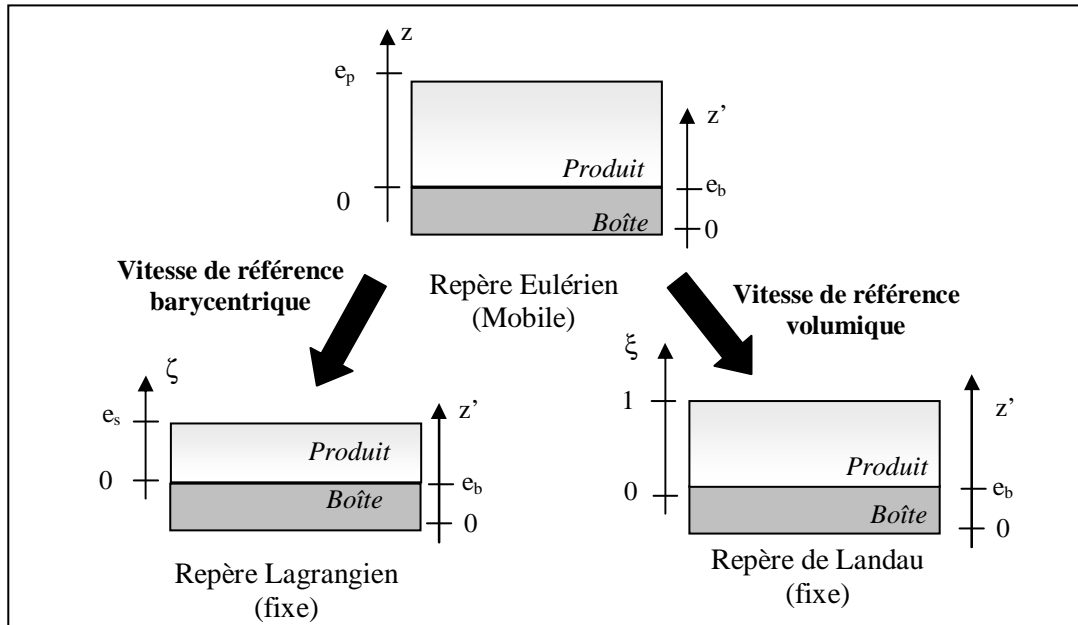


Figure 3-37 : Repères fixes et mobiles

Le Tableau 3-12 synthétise les diverses relations retenues pour exprimer l'évolution des propriétés du mélange.

Propriétés	Relations
Capacité thermique	$C_p = w_A C_{p,A} + w_B C_{p,B}$
Conductivité thermique	$\lambda = w_A \lambda_A + w_B \lambda_B - \alpha (\lambda_A - \lambda_B) (I - w_B^{0.5}) w_B$
Masse volumique	$\rho(X) = \rho_B^0 \frac{I + X}{I + \phi X}$
Coefficient de diffusion	$D(X, T) = D_0 e^{-\frac{E_a}{RT}} e^{-\frac{a}{X}}$
Coefficient de transmission	$\tau = \tau e^{-\kappa_A (e - e_s)}$

Tableau 3-12 : Expression des propriétés physiques

3.1.1 Bilan massique

Dans le cas de transferts monodimensionnels, les équations de conservation de la masse s'écrivent (chapitre 1) :

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho_B}{\partial t} + \frac{\partial (\rho_B v)}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial \rho_B}{\partial z} \right) \\ \frac{\partial \rho_A}{\partial t} + \frac{\partial (\rho_A v)}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial \rho_A}{\partial z} \right) \end{cases} \quad \begin{matrix} \text{3-57} \\ \text{3-58} \end{matrix}$$

En $z = 0$, le produit est en contact avec la coupelle (paroi imperméable), le flux massique est alors nul.

$$\frac{\partial \rho_A}{\partial z} = 0 \quad \text{3-59}$$

Le bilan massique à l'interface air - produit ($z = e(t)$) s'exprime par :

$$F_m \left(1 - \frac{\rho_A}{\rho_A^0} \right) = -D \frac{\partial \rho_A}{\partial z} + \rho_A v \quad \text{3-60}$$

Pour faire la distinction entre les deux approches retenues, dans la suite du développement, nous continuons de noter D le coefficient de diffusion et v la vitesse de référence pour l'approche barycentrique et les notons respectivement D' et v' pour l'approche volumique. Précisons cependant que dans le cas où les masses volumiques des deux constituants (A et B) sont proches, v est peu différent de v' (et donc D de D').

3.1.1.1 Choix d'une vitesse de référence volumique

Dans cette approche, la vitesse de référence est définie par [3]:

$$v' = f_A v_A + f_B v_B \quad \text{3-61}$$

Expression du bilan massique dans le repère mobile $[0, e]$

Si l'hypothèse de volumes spécifiques constants et la condition d'imperméabilité à l'interface film-substrat est vérifiée, Vrentas et Vrentas [3, 33] ont montré que la vitesse volumique moyenne est nulle en tout point du film. L'équation 3-58 peut s'écrire alors :

$$\frac{\partial \rho_A}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D' \frac{\partial \rho_A}{\partial z} \right) \quad \text{3-62}$$

En introduisant la fraction volumique f_A du solvant, on obtient :

$$\frac{\partial f_A}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D' \frac{\partial f_A}{\partial z} \right) \quad \text{avec} \quad f_A = \frac{\rho_A}{\rho_A^0} \quad \mathbf{3-63}$$

Les conditions aux limites s'écrivent alors :

$$\text{en } z = 0 \quad \frac{\partial f_A}{\partial z} = 0 \quad \mathbf{3-64}$$

$$\text{en } z = e(t), \quad F_m (1 - f_A) = -D' \rho_A^0 \frac{\partial f_A}{\partial z} \quad \mathbf{3-65}$$

Expression du bilan massique dans un repère fixe [0,1]

La variation du domaine est prise en compte par le biais de la transformée de Landau qui permet de se ramener à un domaine fixe compris entre 0 et 1 par le changement de variable suivant :

$$\xi = \frac{z}{e(t)} \quad \mathbf{3-66}$$

Cette transformation utilise :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_z = \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_\xi - \frac{\xi}{e} \frac{de}{dt} \left. \frac{\partial}{\partial \xi} \right|_t \\ \left. \frac{\partial}{\partial z} \right|_t = \frac{1}{e} \left. \frac{\partial}{\partial \xi} \right|_t \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \mathbf{3-67} \\ \mathbf{3-68} \end{array}$$

Dans ce nouveau repère, l'équation de Fick s'exprime alors par :

$$\frac{\partial f_A}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\frac{D'}{e^2} \frac{\partial f_A}{\partial \xi} \right) - \frac{\xi}{e} \frac{F_m}{\rho_A^0} \frac{\partial f_A}{\partial \xi} \quad \mathbf{3-69}$$

avec les conditions aux limites suivantes :

$$\text{en } \xi = 0 \quad \frac{\partial f_A}{\partial \xi} = 0 \quad \mathbf{3-70}$$

$$\text{en } \xi = 1 \quad -\rho_A^0 \frac{D'}{e} \left(\frac{\partial f_A}{\partial \xi} \right) = F_m (1 - f_A) \quad \mathbf{3-71}$$

3.1.1.2 Choix d'une vitesse de référence barycentrique

Dans cette approche, la vitesse de référence du système est définie par :

$$v = \frac{I}{\rho} (\rho_A v_A + \rho_B v_B) \quad \mathbf{3-72}$$

Expression du bilan massique dans le repère mobile $[0, e]$

En tenant compte d'une vitesse barycentrique et après plusieurs étapes de calculs détaillées entre autre par Navarri [18, 19] et Chettaf [24], l'équation de Fick peut s'écrire sous la forme :

$$\rho_B \left(\frac{\partial X}{\partial t} + v_B \frac{\partial X}{\partial z} \right) = \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\rho D}{1+X} \frac{\partial X}{\partial z} \right) \quad \text{avec} \quad X = \frac{\rho_A}{\rho_B} \quad \mathbf{3-73}$$

avec les conditions aux limites suivantes :

$$\text{en } z = 0 \quad \frac{\partial X}{\partial x} = 0 \quad \mathbf{3-74}$$

$$\text{en } z = e(t) \quad -\rho_B^0 D \frac{\partial X}{\partial z} = F_m \quad \mathbf{3-75}$$

Expression du bilan massique dans le repère fixe $[0, e_s]$

L'équation (Eq. 3-73) fait intervenir la vitesse du soluté v_B . Une solution pour éviter le calcul de ce terme est d'effectuer un changement de repère Eulérien-Lagrangien [18, 79]. Dans le repère lié au produit sec, la vitesse est nulle ($v_B = 0$) et la variable d'espace notée ζ varie entre 0 et e_s .

L'expression des dérivées s'écrit alors :

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_z = \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_\zeta \quad \mathbf{3-76}$$

$$\left. \frac{\partial}{\partial z} \right|_t = \left. \frac{\rho_B}{\rho_B^0} \frac{\partial}{\partial \zeta} \right|_t \quad \mathbf{3-77}$$

L'équation de diffusion en coordonnées Lagrangiennes devient :

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \zeta} \left(\frac{D}{(1+\psi X)^2} \frac{\partial X}{\partial \zeta} \right) \quad \mathbf{3-78}$$

Avec les conditions aux limites :

$$\text{en } \zeta = 0 \quad \frac{\partial X}{\partial \zeta} = 0 \quad \mathbf{3-79}$$

$$\text{en } \zeta = e_s \quad F_m (1+\psi X)^2 = -D \rho_B^0 \frac{\partial X}{\partial \zeta} \quad \mathbf{3-80}$$

3.1.2 Bilan thermique

Dans le cas de transferts unidirectionnels, l'équation de conservation de l'énergie (Eq. 1-21) s'écrit (chapitre 1):

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho_A v_A C_{p,A} T \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho_B v_B C_{p,B} T \right) + \phi_{IR} \quad 3-81$$

avec ϕ_{IR} l'apport interne en $W.m^{-3}$.

La condition aux limites à l'interface produit - air s'écrit :

$$\text{en } z = e(t) \quad -\lambda \frac{\partial T}{\partial z} = h_{cp} (T - T_{air}) + F_m L_v + \varepsilon \sigma (T^4 - T_e^4) \quad 3-82$$

avec $h_{cp} (T - T_{air})$: la densité de flux échangée par convection

$F_m L_v$: le terme d'évaporation

$\varepsilon \sigma (T^4 - T_e^4)$: l'échange radiatif de grandes longueurs d'ondes

L_v est la chaleur latente de vaporisation de l'eau et ε est l'émissivité du produit. Le facteur de forme des parois de l'enceinte, vu du produit, est supposé égale à 1.

A l'interface boîte - produit, on a :

$$\text{en } z' = 0 \quad \phi_b = -\lambda \frac{\partial T}{\partial z'} \quad 3-83$$

ϕ_b est la densité de flux de chaleur conductif de la boîte. Elle est obtenue en résolvant le bilan thermique au sein de la boîte.

3.1.2.1 Choix d'une vitesse de référence volumique

En utilisant comme vitesse de référence la vitesse moyenne volumique et en introduisant la fraction volumique de solvant, l'équation de la chaleur devient :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D' (C_{p,A} \rho_A^0 - C_{p,B} \rho_B^0) T \frac{\partial f_A}{\partial z} \right) + \phi_{IR} \quad 3-84$$

En appliquant la transformée de Landau, on aboutit aux relations suivantes dans le repère $[0, 1]$:

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\frac{\lambda}{e^2} \frac{\partial T}{\partial \xi} \right) - \rho C_p \frac{\xi}{e} \frac{F_m}{\rho_A^0} \frac{\partial T}{\partial \xi} + \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\frac{D'}{e^2} (C_{p,A} \rho_A^0 - C_{p,B} \rho_B^0) T \frac{\partial f_A}{\partial \xi} \right) + \phi_{IR} \\ - \frac{\lambda}{e} \frac{\partial T}{\partial \xi} = \phi_b \quad \text{en } \xi = 0 \end{array} \right. \quad 3-85$$

$$\left\{ \begin{array}{l} - \frac{\lambda}{e} \frac{\partial T}{\partial \xi} = h_{cp} (T - T_{air}) + F_m L_v + \varepsilon \sigma (T^4 - T_p^4) \quad \text{en } \xi = 1 \end{array} \right. \quad 3-86$$

3-87

3.1.2.2 Choix d'une vitesse de référence barycentrique

Dans le cas d'une vitesse de référence barycentrique, l'équation de la chaleur s'écrit en utilisant les coordonnées Lagrangiennes [7]:

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \zeta} \left(\frac{\lambda}{1 + \psi X} \frac{\partial T}{\partial \zeta} \right) + C_{p,A} \frac{\rho_B^0 D}{(1 + \psi X)^2} \frac{\partial X}{\partial \zeta} \frac{\partial T}{\partial \zeta} + \phi_{IR} \end{array} \right. \quad \text{3-88}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} - \lambda \frac{1}{1 + \psi X} \frac{\partial T}{\partial \zeta} = \varphi_b \quad \text{en } \zeta = 0 \end{array} \right. \quad \text{3-89}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} - \lambda \frac{1}{1 + \psi X} \frac{\partial T}{\partial \zeta} = h_{cp} (T - T_{air}) + F_m L_v + \varepsilon \sigma (T^4 - T_p^4) \quad \text{en } \zeta = e_s \end{array} \right. \quad \text{3-90}$$

3.1.2.3 Bilan thermique de la boîte

Au sein de la boîte, on considère que le transfert se fait par conduction. Les apports par rayonnement sont pris en compte par l'intermédiaire d'un terme source.

$$\left(\rho C_p \right)_b \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z'} \left(\lambda_b \frac{\partial T}{\partial z'} \right) + \phi_{IR} \quad \text{3-91}$$

Sur la face inférieure, la boîte est soumise à des échanges convectifs et radiatifs de grandes longueurs d'ondes :

$$\text{En } z' = 0 \quad - \lambda_b \frac{\partial T}{\partial z'} = h_b (T_{air} - T) + \varepsilon_b \sigma (T_e^4 - T^4) \quad \text{3-92}$$

Sous la boîte, les échanges de chaleur convectifs sont dus à de la convection naturelle. Pour évaluer le coefficient de convection h_b , on suppose que la boîte est une plaque plane maintenue à une température T , plongée dans un flux d'air laminaire à la température T_{air} . Il est alors déduit du nombre de Nusselt qui s'exprime par ($c = 0,54$, $n = 0,25$) :

$$Nu = c (G_r P_r)^n = \frac{h_b D}{\lambda} \quad \text{avec} \quad (10^5 < G_r P_r < 2 \cdot 10^9) \quad \text{3-93}$$

où le nombre de Grashof et de Prandtl sont évalués à la température du film :

$$G_r = \frac{g \beta (T - T_\infty) D^3}{\nu^2} \quad \text{et} \quad P_r = \frac{\mu C_p}{\lambda} \quad \text{avec} \quad T_f = \frac{T + T_{air}}{2} \quad \text{3-94}$$

A l'interface boîte - produit, la densité de flux convectif φ_b introduite dans l'équation 3-83 est donnée par :

$$\text{en } z' = e_b \quad \varphi_b = \lambda_b \frac{\partial T}{\partial z'} \quad \text{3-95}$$

3.1.2.4 Flux infrarouge de courtes longueurs d'ondes

La densité de flux infrarouge transmise à travers le produit est donnée par la loi de Lambert-Beer [35]. Elle dépend de l'éclairement reçu à la surface du produit noté P_0 mais aussi du coefficient d'extinction du produit κ . Celui-ci dépend de la température d'émission des émetteurs infrarouges. D'autre part, il évolue en fonction de la teneur en eau du produit. A une profondeur z de la surface, le flux transmis P_t est estimé par la relation :

$$P_t(z) = P_0 e^{-\kappa z} \quad 3-96$$

La densité de flux absorbée au sein du produit à une profondeur z est alors donnée par :

$$P_{IR}(z) = P_0 (1 - e^{-\kappa z}) \quad 3-97$$

La densité de flux infrarouge absorbée par la boîte de Pétri est obtenue par une démarche analogue. Elle dépend de l'éclairement transmis à travers le produit et du coefficient d'extinction de la boîte κ_b . P_0 est liée à l'éclairement incident et au coefficient de réflexion du produit qui a été donné au chapitre 2.

3.1.2.5 Bilan thermique dans le cas d'une température homogène du produit

Les expérimentations menées au chapitre 2 ont montré que le gradient de température dans le produit reste faible. En utilisant le principe de conservation de l'énergie, et en introduisant les conditions aux limites, on obtient dans le cas d'une température homogène du produit :

$$\left(\rho_p C_p \right) \frac{\partial T}{\partial t} = h_p (T_{air} - T) - F_m L_v + \varepsilon_b \sigma (T_e^4 - T^4) + \varphi_b + P_{IR} \quad 3-98$$

En conclusion, les équations permettant de décrire les transferts de masse et de chaleur dans le produit ont été développées selon deux approches : une vitesse de référence volumique et barycentrique. Deux approches ont été mises en avant afin de s'affranchir des problèmes liés au retrait de la matière (Transformée de Landau et passage en coordonnées Lagrangiennes). Au final, nous disposons de deux modèles :

- Un modèle basé sur le choix d'une vitesse de référence volumique, dont le système d'équations est exprimé en fonction de la fraction volumique du solvant. Celles-ci sont résolues dans un repère fixe compris entre 0 et 1.
- Un modèle prenant en compte une vitesse de référence barycentrique. Le système d'équations est fonction de la teneur en eau et est résolu dans le repère lagrangien $[0, e_s]$

3.2 Résolution numérique

Les deux modèles ont été programmés en langage Fortran. La simulation du comportement thermo-hydrigue de notre système implique la résolution de deux systèmes d'équations différentielles fortement non linéaires et couplés.

Le système d'équations différentielles régissant le comportement du produit et de la boîte est intégré spatialement par une méthode des volumes finis. Développée par Patankar [80], cette méthode utilise le principe de conservation des grandeurs physiques. Les équations différentielles locales sont intégrées sur chaque volume fini. On obtient ainsi un système contenant autant d'équations discrètes que de nœuds de calcul. Cette méthode utilise les mêmes schémas que la méthode des différences finies.

Le maillage retenu est schématisé sur la Figure 3-38. Chaque variable d'état ($Y = T, X$ ou f_i) est supposée varier linéairement entre deux nœuds du maillage, ce qui permet d'exprimer simplement sa dérivée spatiale en un nœud i par rapport à une variable d'espace ($x = \zeta, \xi, z, z'$) par :

$$\left. \frac{\partial Y}{\partial x} \right|_i = \frac{Y_{i+1} - Y_{i-1}}{x_{i+1} - x_{i-1}} \quad \mathbf{3-99}$$

L'intégration spatiale de l'équation de Fick et de l'équation de la chaleur donne lieu à un système de deux équations discrétisées sous la forme :

$$\dot{Y}_i = \alpha_i Y_{i-1} + \beta_i Y_i + \gamma_i Y_{i+1} + \delta_i \quad \mathbf{3-100}$$

où α_i , β_i et γ_i et δ_i sont des coefficients définis sur chaque volume i .

Les équations ainsi discrétisées sont semblables à celles obtenues par Lamaison [3] pour l'approche volumique et à celles de Blanc [4] pour l'approche barycentrique. L'écriture des coefficients α_i , β_i , γ_i et δ_i est détaillée dans l'annexe AI.

Aux interfaces, afin d'assurer la continuité du flux de chaleur, la conductivité thermique est approximée par une moyenne harmonique. Toutes les autres propriétés physiques de la boîte et du produit sont approximées par une moyenne arithmétique. Les équations liées au bilan massique et au bilan thermique sont résolues simultanément. Le système s'écrit alors sous la forme matricielle suivante :

$$[\dot{\mathbf{Y}}] = [\mathbf{A}][\mathbf{Y}] + [\mathbf{B}] \quad \mathbf{3-101}$$

où \mathbf{A} est une matrice tridiagonale, \mathbf{B} un vecteur regroupant les termes sources (δ_i) et \mathbf{Y} le vecteur lié à la teneur en eau et à la température.

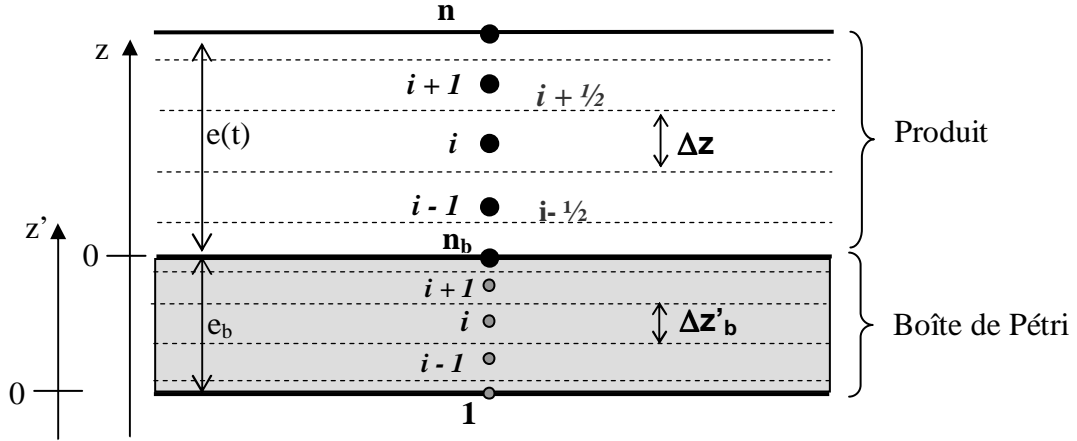


Figure 3-38 : Discretisation spatiale

Pour résoudre le système d'équations différentielles ordinaires du premier ordre, nous avons utilisé la méthode de type prédicteur correcteur d'ordre douze. Cette méthode est disponible dans une routine (DIVPAG) de la librairie IMSL. Le couplage et la non linéarité des équations sont résolus par la méthode de Newton. La gestion du pas de temps est automatique. Un pas de temps initial est introduit puis est réduit si nécessaire afin d'obtenir la convergence du calcul. Un critère de convergence est introduit de façon à ce que le minimum entre l'écart absolu et relatif entre deux itérations successives soit inférieur à une valeur donnée.

Notons que l'utilisation de la méthode d'Euler, couplée à une procédure itérative permettant de traiter la non linéarité des équations n'a pas donné des résultats satisfaisants (problèmes de convergence).

3.3 Essais de simulation

Dans cette partie, différents essais de simulations sont réalisés en convection et en infrarouge. D'après l'étude expérimentale menée, on a pu voir que le gradient de température au sein du produit est faible. Une première étude numérique basée, sur l'approche volumique, est menée afin de le vérifier. Les résultats obtenus sont ensuite confrontés à ceux obtenus grâce à l'approche barycentrique afin de déterminer laquelle de ces deux méthodes semblent la plus appropriée à notre problème, notamment en terme de temps de calcul. En effet, le modèle développé servira dans une phase finale à déterminer une loi de commande de l'éclairage infrarouge. Ceci nécessite d'avoir un modèle dont les temps de calcul sont faibles.

3.3.1 Calcul des fractions volumiques et du champ de température

Un premier essai de simulation est mené avec des conditions aérauliques proches de celles de l'essai N°4 ($T_{air} = 55^\circ\text{C}$ et $v_{air} = 2.8 \text{ m.s}^{-1}$). Les paramètres du coefficient de diffusion introduits dans le modèle sont : $D_0 = 8 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, $E_a = 20430 \text{ J.mol}^{-1}$ et $a = 1$ (le choix de ces valeurs est détaillé au paragraphe 3.4). Le maillage est uniforme et contient 50 volumes finis au sein du produit et 5 dans la boîte. Le

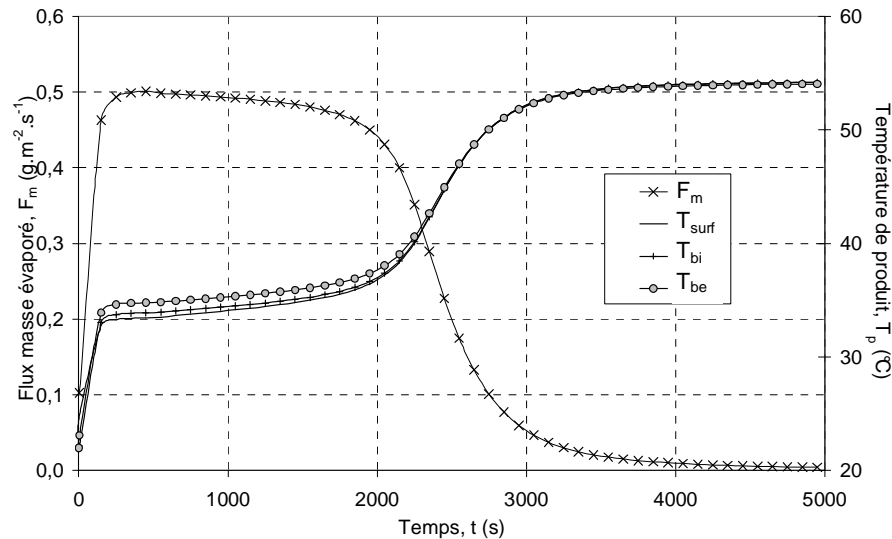
système étant fortement non linéaire, le pas de temps initial doit être faible afin d'obtenir la convergence des résultats ($5 \cdot 10^{-4}$ s). De plus, le critère de convergence introduit pour le traitement de la non linéarité est de 10^{-5} .

La Figure 3-39 a présente l'évolution du flux d'eau évaporé et des différentes températures au cours de cet essai. Au début du séchage, lorsque le flux masse est constant, un faible gradient de température existe au sein de la boîte (environ 1°C). Lors de la montée en température, ce gradient diminue progressivement, le système tend vers une température homogène en fin de séchage. Au sein du produit, le gradient de température est inférieur à $0,4^\circ\text{C}$ tout au long du séchage.

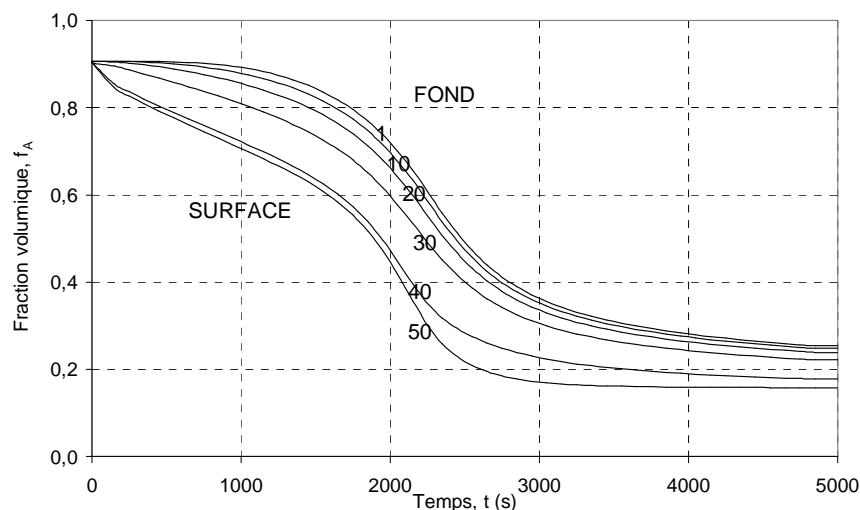
Le modèle donne accès au champ de fractions volumiques d'eau (Figure 3-39b). Le coefficient de diffusion en différents points du maillage est donné sur la Figure 3-39c. En surface, la fraction volumique d'eau chute rapidement du fait de l'évaporation, entraînant une forte diminution du coefficient de diffusion. L'eau contenue dans le produit migre par diffusion liquide vers la surface. Le coefficient de diffusion diminue de plus de deux décades au cours du séchage, d'où l'apparition de fort gradient de fractions volumiques. A 3000 s, alors que la température commence à se stabiliser, l'écart entre la fraction volumique de surface et celle du volume en contact avec la boîte est encore significatif.

Ainsi, au cours d'un essai convectif, où les sollicitations sont modérées, la température du produit est sensiblement homogène au sein du produit. Les gradients de fraction volumiques sont importants.

a)



b)



c)

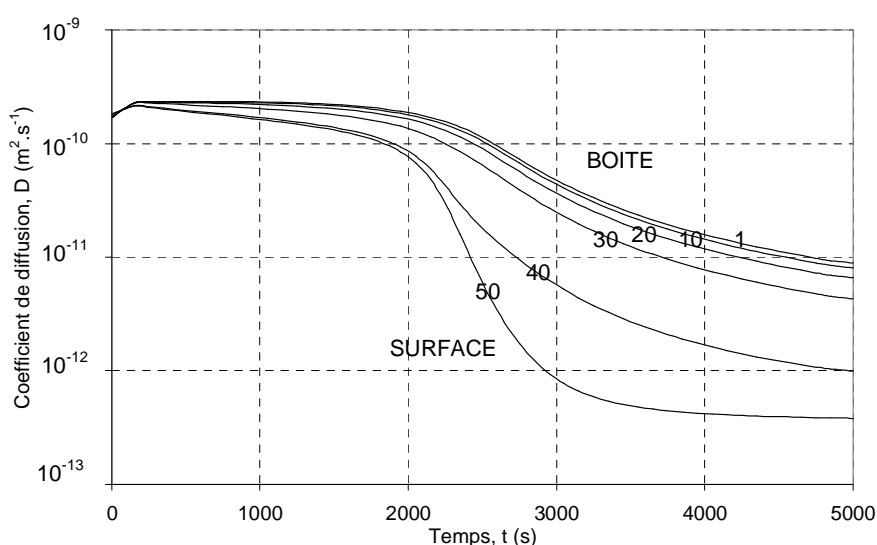


Figure 3-39 : Essai de simulation en convection ($T_{\text{air}} = 55^\circ\text{C}$, $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$)
(a) Flux d'eau évaporé et champ de température (b) champ de fractions volumiques d'eau
(c) coefficient de diffusion

Une simulation est à présent menée en convection et infrarouge avec des conditions similaires à celles de l'essai N°6 ($T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$, $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$).

Dans cet essai, les sollicitations sont plus importantes que dans l'essai en convection pour lequel nous avons déjà pu observer l'apparition d'une forte variation du coefficient de diffusion et d'un gradient important de fractions volumiques d'eau. Aussi, en utilisant le même maillage et le même pas de temps que pour l'essai convectif, le calcul diverge. La non linéarité et le couplage des équations sont plus difficiles à traiter.

Plusieurs auteurs ayant choisis de décrire le comportement thermohydrigue de solvant polymère par un modèle analogue au nôtre, et notamment Guerrier et al. [11], ont choisi pour obtenir la convergence de leur calcul de déformer le maillage. Il s'agit alors de répartir plus de nœuds proches de la surface là où les gradients de concentrations sont les plus importants. Nous avons choisi de suivre la même

démarche et intégré une déformation hyperbolique au maillage. La position du nœud i est alors donnée dans le repère $[0, e_s]$ par :

$$\zeta(i) = e_s \frac{\tanh\left(q \frac{i-1}{n_p-1}\right)}{\tanh(q)} \quad \mathbf{3-102}$$

avec n_p le nombre de nœuds dans le produit et q la constante de déformation.

Au lieu de déformer le maillage, nous aurions pu choisir d'augmenter le nombre de nœuds, mais cela nous aurait obligé à diminuer considérablement le pas de temps et le critère de convergence, ce qui aurait induit des temps de calculs beaucoup plus longs. Dans cet essai, la convergence du calcul a été obtenue pour un maillage contenant 25 volumes déformés ($q = 10$), un pas de temps de 10^{-5} et un critère de convergence de 10^{-7} .

La Figure 3-40 présente les résultats obtenus. Comme pour l'essai convectif, la température de surface est inférieure aux températures de boîte lors de la première phase du séchage. En moyenne, le gradient de température au sein du produit est de $0,6^\circ\text{C}$.

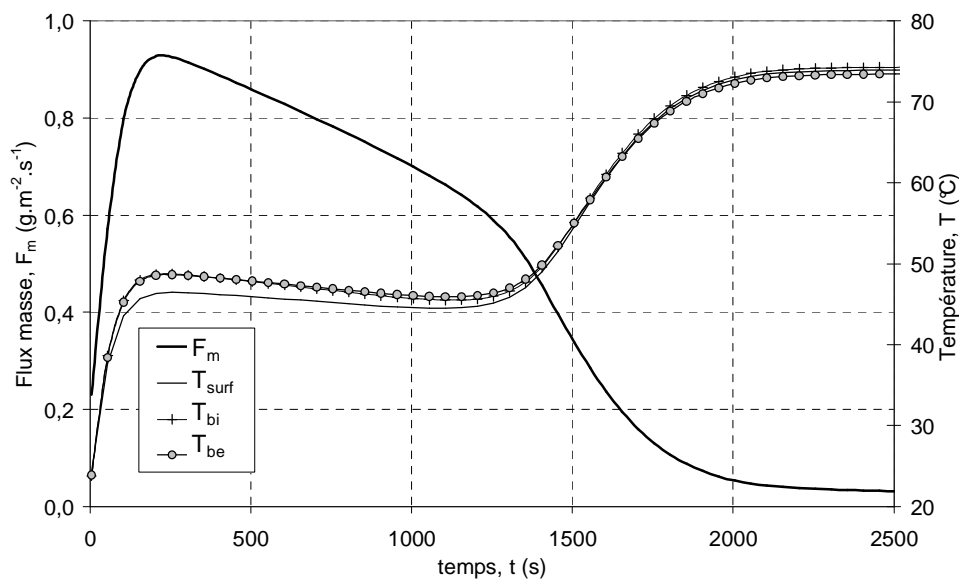


Figure 3-40 : Simulation de cinétiques de séchage pour un essai en infrarouge
 $(T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}, v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1} \text{ et } P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2})$

Conformément aux résultats expérimentaux déjà observés, les simulations montrent que le gradient de température au sein du produit reste faible tout au long du séchage en convection et avec des infrarouges.

3.3.2 Comparaison approches « volumique et barycentrique » dans le cas d'une température homogène du produit

Dans cette partie, le gradient de température au sein du produit est considéré comme négligeable. L'approche basée sur le champ de fractions volumiques est comparée à celle basée sur le champ de fractions massiques. Des exemples de cinétiques obtenues en séchage convectif puis en infrarouge sont confrontés. Le solvant et le soluté ayant des masses volumiques assez proches, la confrontation des deux approches est réalisée en exploitant la même expression du coefficient de diffusion.

3.3.2.1 Essai en convection

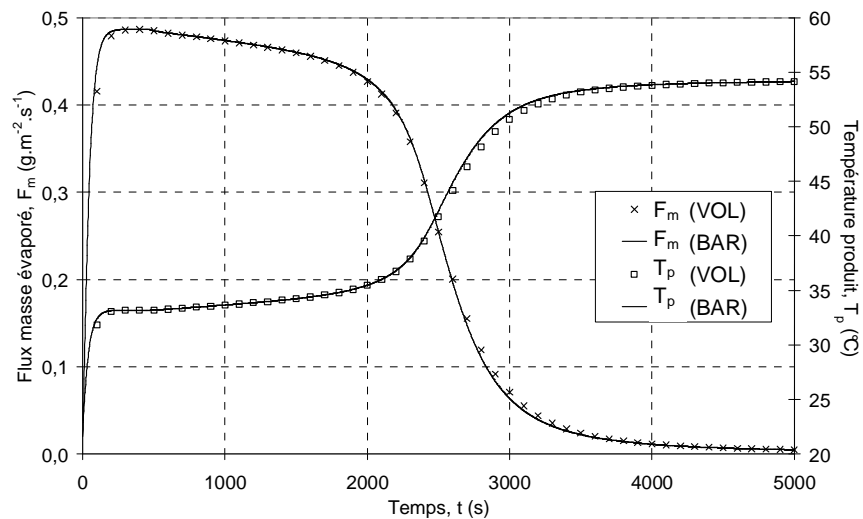
Les conditions imposées dans les simulations décrites ci-après sont $T_{\text{air}} = 55^{\circ}\text{C}$ et $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$.

Les paramètres numériques introduits dans les deux modèles permettent d'assurer la convergence du calcul. Les difficultés de résolution numérique sont abordées par la suite, mais à titre indicatif, nous donnons dès à présent les paramètres numériques retenus dans ces essais.

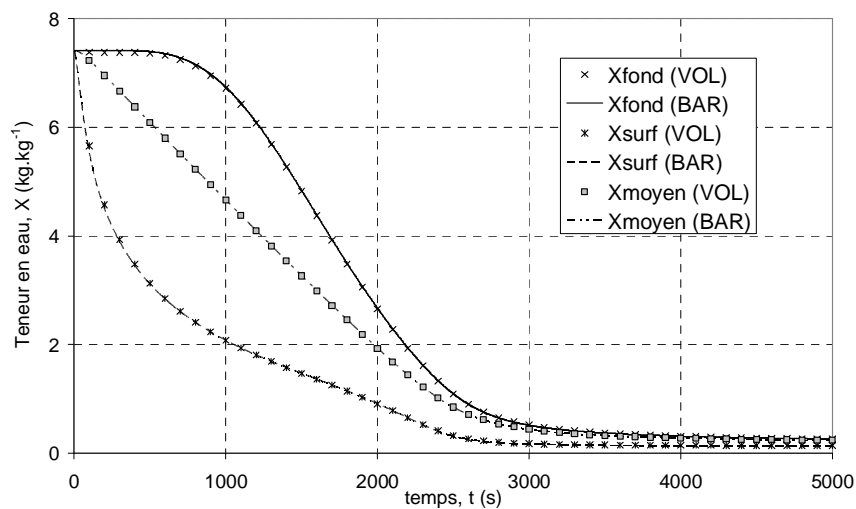
Dans le cas de l'approche barycentrique, les résultats ont été obtenus avec un maillage uniforme comprenant 50 nœuds pour le produit et 5 nœuds pour la boîte. Le pas de temps initial est de 0,05 s. Dans la procédure de résolution, le critère de convergence sur le calcul itératif choisi impose une erreur sur la teneur en eau et sur les températures inférieure à 10^{-3} . Dans le cas de l'approche volumique, le maillage est le même que pour l'approche barycentrique. Pour obtenir la convergence du calcul, il faut par contre un pas de temps et un critère de convergence plus faible ($5 \cdot 10^{-4} \text{ s}$ et 10^{-5}).

Sur les Figures 3-4 a,b et c sont présentés l'évolution du flux d'eau évaporé, de la température de produit et des gradients de teneur en eau et de fraction volumique obtenues par l'approche volumique (VOL) et par l'approche barycentrique (BAR). Les deux modèles ont abouti à des évolutions sensiblement similaires pour la température et la teneur en eau. En effet, les écarts de température restent inférieurs à 1°C et les écarts sur le flux masse évaporé inférieurs à $5 \cdot 10^{-6} \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. La résolution des champs de teneur en eau et de fraction volumique n'étant pas faite dans le même repère selon l'approche choisie, seule la teneur en eau moyenne et les teneurs en eau du volume en surface et du volume en contact avec la boîte sont tracées. La même démarche est retenue pour la fraction volumique. Le faible écart observé sur le flux d'eau évaporé se retrouve uniquement sur la teneur en eau et la fraction volumique de surface.

a)



b)



c)

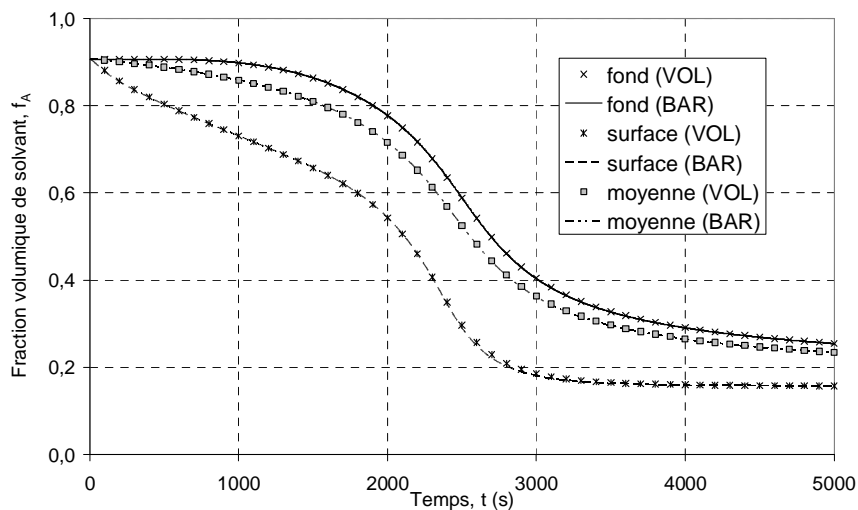


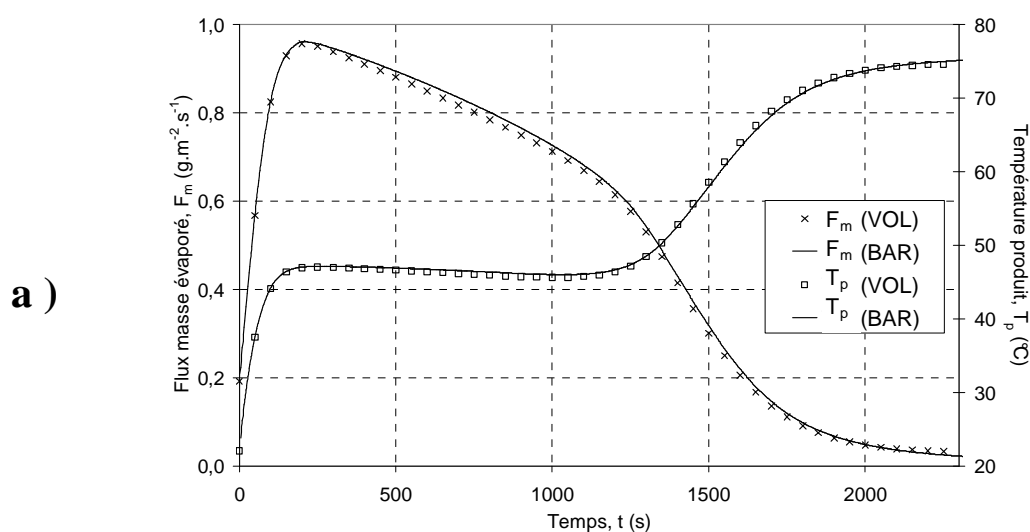
Figure 3-41 : Confrontation de l'approche volumique et barycentrique pour un essai en convection ($T_{\text{air}} = 55^{\circ}\text{C}$, $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$, $H_{\text{air}} = 20\%$)
Evolutions du flux d'eau évaporé et de la température du produit (a), des teneurs en eau (b) et des fractions volumiques de solvant (c)

3.3.2.2 Essai en infrarouge

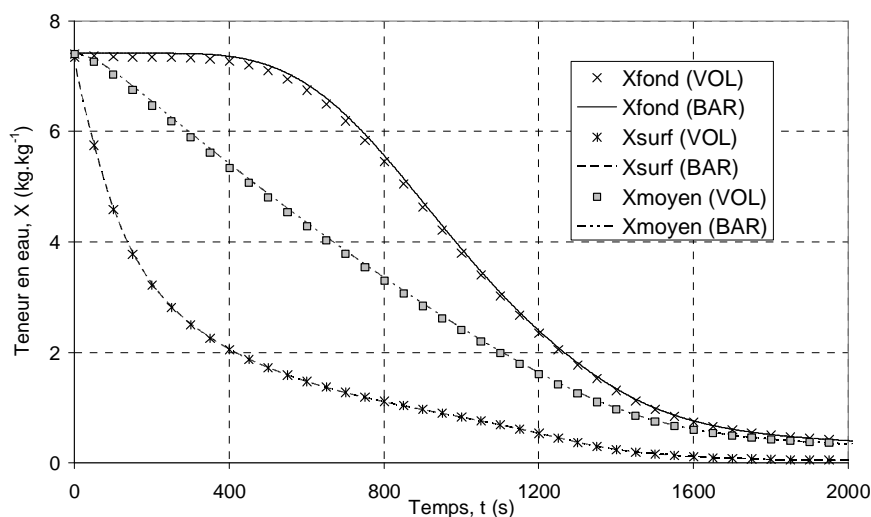
Il s'agit à présent de la confrontation des deux approches dans le cas d'un séchage combinant des apports convectifs et infrarouges. On se place dans les conditions suivantes : $T_{air} = 35^\circ\text{C}$, $v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $P_{IR} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$.

Pour cet essai, dans le cas de l'approche barycentrique, les résultats ont été obtenus avec les mêmes paramètres numériques que pour l'essai en convection précédemment décrit. Par contre, dans le cas de l'approche volumique, le maillage est déformé pour obtenir la convergence du calcul. Afin de pouvoir comparer les deux méthodes, nous avons choisi de conserver le même nombre de nœuds (50 volumes pour le produit et 5 pour la boîte). Le pas de temps est de 10^{-5} s et le critère de convergence de 10^{-7} et le paramètre de déformation (q) introduit dans l'équation 3-102 vaut 10.

Les Figures 3-5 a,b et c donnent les évolutions des grandeurs significatives d'un essai de séchage (X , f_l , T_p , F_m) en fonction du temps pour les deux approches. Les évolutions de la température de produit et du flux d'eau évaporé calculées par les deux approches sont très proches. On constate de faibles écarts (inférieur à $0,5^\circ\text{C}$ pour la température et à $0,2 \text{ kg.kg}^{-1}$ pour la teneur en eau moyenne). L'examen des Figures 3-5 b et c montre qu'on aboutit à des évolutions similaires pour les teneurs en eau. La teneur en eau moyenne n'est pas représentative de cette différence alors qu'elle apparaît clairement sur les teneurs en eau de surface et du fond de la boîte.



b)



c)

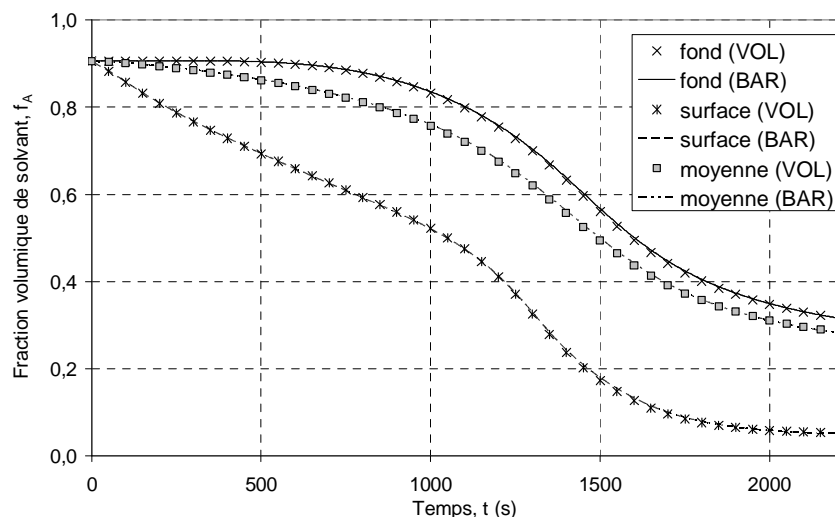


Figure 3-42 : Simulation des cinétiques de séchage (a), des teneur en eau (b) et des fractions volumiques de solvant (c) lors d'un essai en infrarouge ($T_{\text{air}} = 35^{\circ}\text{C}$, $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

Les deux modèles développés, dans le cas d'une température de produit homogène, donnent des résultats quasi-identiques en convection et en infrarouge. Les masses volumiques du produit sec et de l'eau étant assez proches, le choix d'une vitesse de référence volumique ou barycentrique influence peu les résultats. Toutefois, selon la vitesse de référence choisie, nous nous ramenons à un repère fixe par des changements de variables différents. Du coup, les difficultés liées à la résolution numérique sont différentes dans les deux cas et sont à présent détaillées.

3.3.2.3 Résolution numérique et temps de calcul

Approche barycentrique

Divers tests effectués ont montré que pour obtenir la convergence des résultats, il est nécessaire d'utiliser une moyenne arithmétique pour calculer le coefficient de diffusion aux interfaces.

L'influence du maillage a été testée sur l'essai en infrarouge précédemment décrit. La Figure 3-43 montre que quelque soit le maillage utilisé (10, 20 ou 50 nœuds), le calcul converge vers les résultats obtenus avec 200 nœuds. Seule la précision et le temps de calcul varient. La précision sur la teneur en eau et la température de produit est définie comme étant l'erreur relative maximale entre les valeurs obtenues avec un maillage de 200 nœuds (courbes de référence) et le maillage testé. La Figure 3-44 montre que le temps de calcul augmente considérablement avec le nombre de nœuds. A l'inverse, plus le nombre de nœuds est grand, plus le modèle est précis.

En prenant 50 nœuds dans le produit, la précision est de 0,2 % sur la température et de 1,5 % sur la teneur en eau. Dans ce cas, il a fallu 7 secondes pour obtenir les cinétiques avec un PC de vitesse 3Ghz et de RAM 3 Go alors qu'il faut plusieurs minutes avec 200 nœuds. Prendre 50 nœuds est donc un compromis satisfaisant.

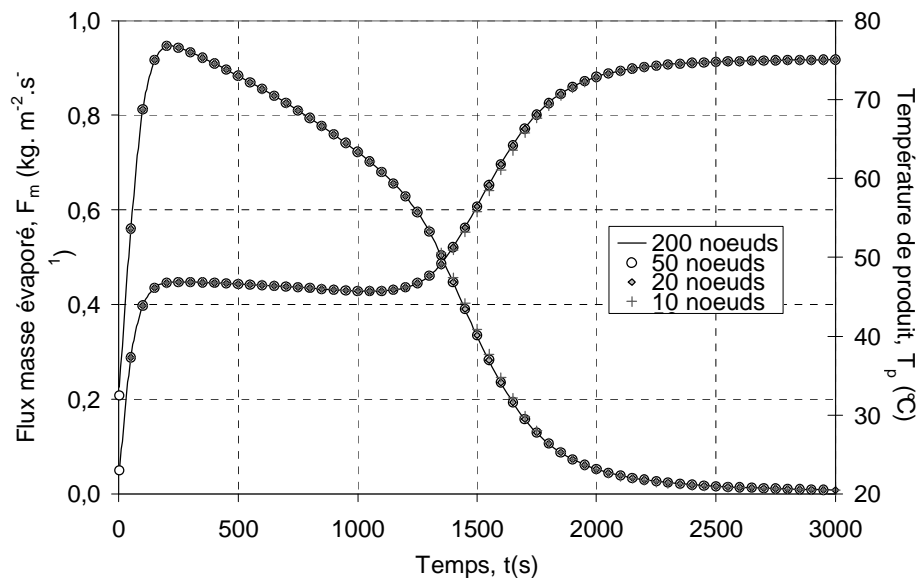


Figure 3-43 : Influence du maillage (Approche barycentrique) lors d'un essai infrarouge
 $(T_{\text{air}} = 35^{\circ}\text{C}, v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1} \text{ et } P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2})$

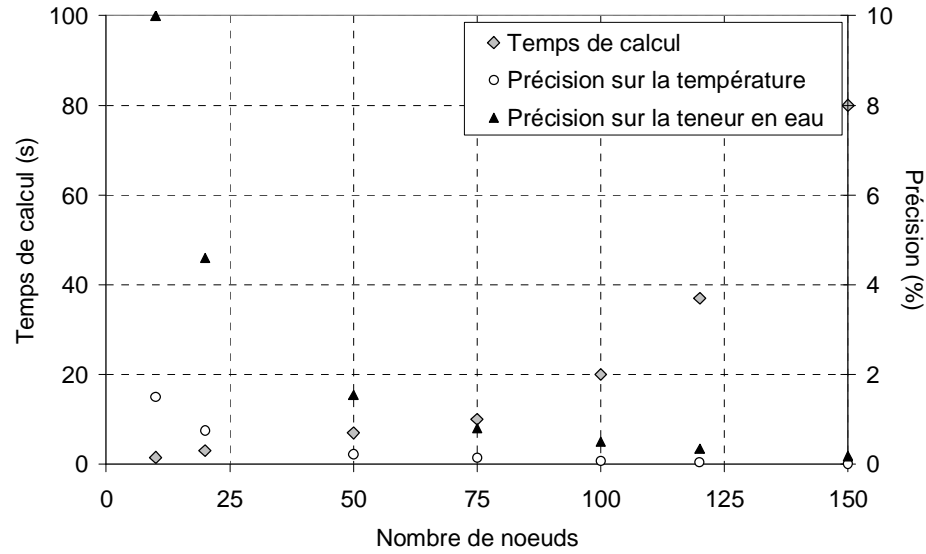


Figure 3-44 : Temps de calcul et précision du modèle basé sur l'approche barycentrique
Essai en infrarouge ($T_{\text{air}} = 35^{\circ}\text{C}$, $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

Approche volumique

En convection, le calcul converge avec 50 nœuds uniformément répartis dans le produit. Dans le cas de l'approche volumique, à cause de la transformée de Landau, l'équation de Fick intégrée sur le volume du nœud de surface fait intervenir le coefficient de diffusion au dénominateur. Comme il varie de plusieurs ordres de grandeurs au cours du séchage, le calcul de la fraction volumique en surface peut facilement diverger. Le critère de convergence doit donc être beaucoup plus stricte que dans le cas de l'approche barycentrique. L'erreur absolue sur la fraction volumique doit être inférieure à 10^{-5} . Le choix de ce critère de convergence impose aussi de réduire le pas de temps initial à $5 \cdot 10^{-4} \text{ s}$. Au final, le temps de calcul pour simuler les cinétiques de la Figure 3-41 est de 20 minutes. Avec le modèle basé sur l'approche barycentrique, les mêmes résultats sont obtenus en seulement 10 s.

Lorsque le produit est soumis à un apport infrarouge, la convergence du calcul est encore plus difficile à obtenir. En effet, lors d'un essai de séchage infrarouge, les sollicitations sont plus importantes et la teneur en eau en surface chute bien en dessous de la teneur en eau d'équilibre avec l'air. Le coefficient de diffusion alors devient très faible en surface. Les gradients de concentration sont ainsi faibles. Le coefficient de diffusion est approximé aux interfaces par une moyenne arithmétique. Plus le gradient de concentration est important, et c'est le cas en infrarouge, plus cette approximation peut s'avérer inexacte et faire rapidement diverger le calcul, notamment en surface.

Pour obtenir la convergence du calcul, il faut donc limiter l'écart de fraction volumique entre deux nœuds. La Figure 3-45 confronte les simulations de l'essai infrarouge précédemment présenté obtenues en introduisant différents paramètres de déformation (q). Pour un maillage uniforme de 50 nœuds ($q = 1$), cette figure montre clairement que le calcul diverge. Plus q est grand, plus le maillage est déformé, et

donc, plus l'écart entre les fractions volumiques des nœuds proches de la surface est faible.

On note alors que le calcul converge petit à petit. Au final, la convergence des résultats est obtenue pour $q = 10$, ce qui signifie que 40 des 50 nœuds sont placés entre $0,9 e_s$ et e_s . Notons que des résultats similaires ont été obtenus avec un maillage géométrique de raison $q = 1,4$.

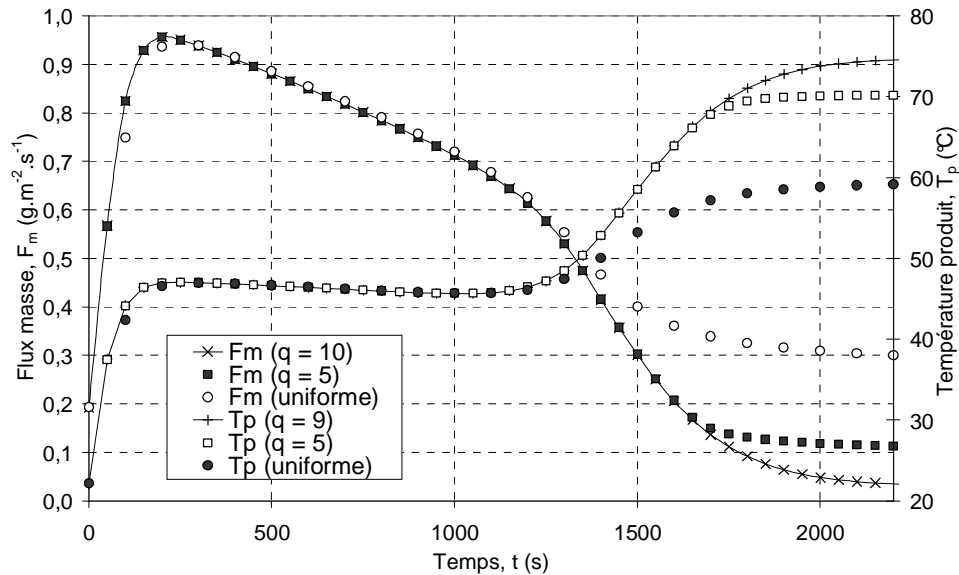


Figure 3-45 : Influence de la déformation du maillage (Approche volumique, 50 noeuds) lors d'un essai infrarouge ($T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$, $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

Pour obtenir la convergence des résultats lors de cet essai, il a alors fallu diminuer le critère de convergence (10^{-7}) et le pas de temps initial ($5 \cdot 10^{-5}$). A titre indicatif, sur un PC de vitesse 3Ghz et de RAM 3 Go, le temps de calcul est de quatre heures.

Ainsi, à travers des essais de simulation en convection et en infrarouge, nous avons pu constater que l'approche volumique génère de nombreux problèmes lors de la résolution numérique notamment à cause de la présence du coefficient de diffusion au dénominateur dans l'équation de conservation de la masse en surface (Eq. 3-69 couplée à Eq. 3-71). Dans la suite de cette étude, nous avons donc retenu l'approche barycentrique qui permet d'obtenir des temps de calcul rapides.

3.4 Estimation du coefficient de diffusion

Le séchage d'un système polymère/solvant est fortement affecté par la variation de son coefficient de diffusion. Comme nous l'avons vu précédemment (chapitre 1), il existe de nombreuses expressions permettant de décrire l'évolution du coefficient de diffusion avec la concentration en solvant, notamment dans le cas des matériaux déformables. Généralement, l'influence de la température sur le coefficient de diffusion est décrite par une loi d'Arrhénius avec un terme d'énergie d'activation

constant. Parmi les différentes expressions proposées dans la littérature, nous avons retenu celle utilisée entre autres par Navarri [18], Blanc [4] et Dufour [30]:

$$D(X,T)=D_0 e^{-\frac{E_a}{RT}} e^{-\frac{a}{X}} \quad \mathbf{3-103}$$

où E_a est l'énergie d'activation liée à la diffusion de matière et D_0 et a des constantes. Pour estimer ces paramètres (D_0 , E_a et a), une méthode basée sur les techniques inverses a été mise en œuvre (chapitre 1).

3.4.1 Description de la méthode

Dans l'approche développée, nous exploitons à la fois les évolutions mesurées de la masse et des températures du produit. Les paramètres du modèle sont estimés par la minimisation d'une somme d'écart quadratique avec contraintes :

$$s(P)=\frac{1}{2}\sum_{i=1}^N\left[\alpha_i(M_i -\tilde{M}_i(P))^2 +\beta_i(T_i -\tilde{T}_i(P))^2\right] \quad \mathbf{3-104}$$

avec M_i et T_i les mesures et \tilde{M}_i et \tilde{T}_i les valeurs calculées pour la masse et la température. N correspond au nombre de points de mesures et P est le vecteur des paramètres inconnus.

Dans cette relation, des coefficients de pondération sont introduits afin d'adimensionner les deux termes de cette fonctionnelle. Plusieurs tests sont effectués en utilisant :

- uniquement les mesures de masse ($\alpha_i = \frac{1}{M_{i=0}^2}$, $\beta_i = 0$)
- uniquement les mesures de température ($\alpha_i = 0$, $\beta_i = \frac{1}{T_{\max}^2}$)
- ou bien les deux $\left(\alpha_i = \frac{1}{M_{i=0}^2}, \beta_i = \frac{1}{T_{\max}^2}\right)$.
-

La méthode de minimisation choisie est celle de Levenberg-Marquardt [51, 52]. Cet algorithme consiste en une combinaison de la méthode de Gauss-Newton et de la méthode de la plus forte pente. Le passage de la méthode de Gauss-Newton à la méthode de la plus forte pente se fait lors du calcul itératif à travers un pas d'apprentissage. Initialement, lorsqu'on se trouve loin de la solution, la méthode de la plus forte pente est privilégiée pour converger plus rapidement vers la solution. Cependant, au voisinage du minimum, cette méthode est peu efficace et lente, c'est pourquoi le pas d'apprentissage évolue pour favoriser la méthode de Gauss-Newton, beaucoup plus performante à proximité de la solution.

La procédure itérative s'écrit :

$$P^{k+1}=P^k+\left[(J^k)^T J^k +\mu^k \Omega^k\right]^{-1}(J^k)^T[Y-\tilde{Y}(P^k)] \quad \mathbf{3-105}$$

Où k est le nombre d'itérations, μ^k un scalaire positive et Ω^k est une matrice diagonale. J est la matrice des sensibilités définie ci-dessous par [81]:

$$J(P) = \left[\frac{\partial \tilde{Y}^T(P)}{\partial P} \right]^T \quad \text{3-106}$$

Où \tilde{Y}^T correspond à la matrice transposée de \tilde{Y} .

La procédure s'arrête lorsque l'un des deux critères est satisfait :

$$S(P^k) < E_1 \quad \text{3-107}$$

$$\|P^{k+1} - P^k\| < E_2 \quad \text{3-108}$$

où E_1 et E_2 sont les tolérances fixées et $\| \cdot \|$ est la norme euclidienne d'un vecteur.

Contraintes

Une étude bibliographique a montré que l'énergie d'activation (E_a) d'un système solvant/polymère est classiquement comprise entre 20 et 40 kJ.mol⁻¹. Le paramètre a , quant à lui, est compris entre 0 et 1. Grâce à la solution analytique de l'équation de Fick, nous avons pu déterminer précédemment (Chapitre 2) que la valeur du coefficient de diffusion durant la première partie du séchage est comprise entre 10⁻¹¹ et 10⁻¹⁰ m².s⁻¹. Ces bornes étant fixes pour les paramètres E_a et a , on considère alors que D_0 prend une valeur comprise dans l'intervalle $[4 \cdot 10^{-7}, 10^{-4}]$.

A partir de ces éléments, des contraintes sont alors introduites dans la procédure de minimisation. Les valeurs des paramètres sont bornées et une condition d'inégalité sur la valeur du coefficient de diffusion à l'instant initial est définie.

3.4.2 Analyse des sensibilités et approche stochastique

L'analyse des sensibilités associées à une approche stochastique doit permettre de déterminer s'il est possible d'estimer plusieurs paramètres inconnus en même temps à partir des mesures expérimentales [82]. Pour y parvenir, il faut que ceux-ci soient indépendants les uns des autres, c'est-à-dire que leur sensibilités ne soient pas corrélées entre elles. De plus, il est aussi nécessaire que les sensibilités soient supérieures au bruit de mesures. Les coefficients de sensibilités relatifs sont approximés en utilisant les différences centrées :

$$J_{Y,j} = P_j \frac{\partial \tilde{Y}_i(P)}{\partial P_j} \quad \text{3-109}$$

$$\approx P_j \frac{\tilde{Y}(P_1, \dots, P_j + \delta P_j, \dots, P_3) - \tilde{Y}(P_1, \dots, P_j - \delta P_j, \dots, P_3)}{2\delta P_j} \quad \text{3-110}$$

La Figure 3-46 donne les sensibilités relatives respectivement à la masse et à la température obtenues grâce à la relation 3-110 avec $\delta = 10^{-2}$. Les valeurs des paramètres qui sont introduites dans le modèle pour ces tests numériques sont données dans le tableau ci-dessous (*Valeurs théoriques*).

	D_0 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	E_a ($\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$)	a
Valeurs théoriques	$9,38 \cdot 10^{-6}$	32700	0,332
Valeurs initiales	$9,38 \cdot 10^{-6}$	30000	0,5

Tableau 3-13 : Paramètres du coefficient de diffusion

La sensibilité du paramètre D_0 est plus faible que celle du paramètre E_a qui est particulièrement importante. Cependant, elle atteint tout de même 7°C et 2,5 g, ce qui est supérieure au bruit de mesures estimé à $\pm 2,5^\circ\text{C}$ et $\pm 0,2$ g. La faible influence du paramètre a sur les cinétiques de séchage le rend particulièrement difficile à estimer. De plus, il semble que les évolutions des sensibilités par rapport aux paramètres D_0 et E_a soient liées. Dans ce cas, ils seraient difficilement estimables en même temps.

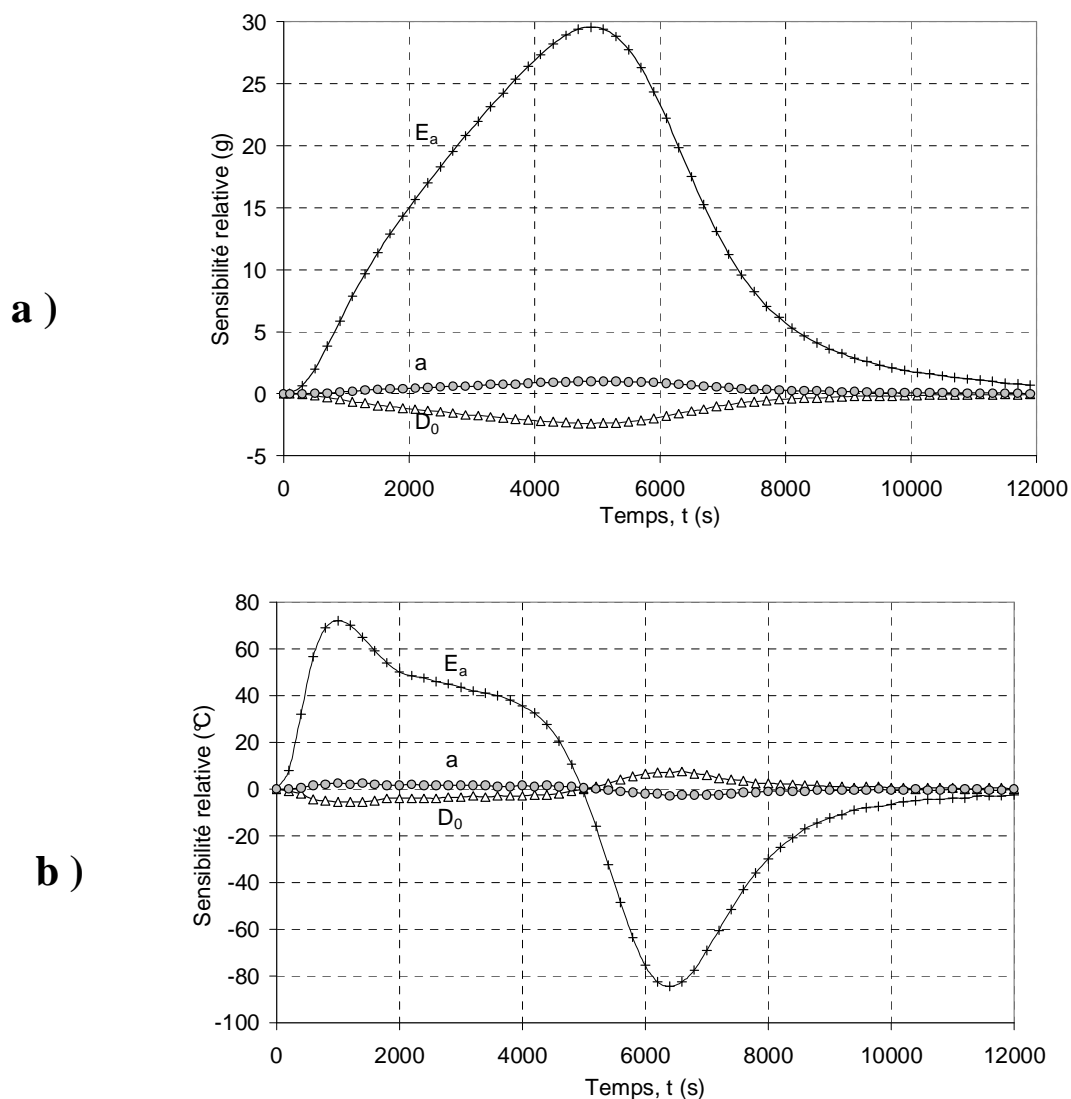


Figure 3-46 : Sensibilité selon la masse (a) et la température (b)

Pour le vérifier, nous calculons les matrices de covariance ou les matrices de corrélation correspondant aux paramètres D_0 , E_a et a . Le calcul des matrices de covariance réduites pour chacun des paramètres permet de savoir si les colonnes des matrices de sensibilités sont indépendantes et donc si les paramètres sont corrélés. Elles sont données par :

$$Var(P_{k_1}, P_{k_2}) = \sigma_n^2 (J_Y^T J_Y)^{-1} \quad 3-111$$

$$= \sigma_n^2 \begin{bmatrix} \sum_{i=1}^N (J_{Y,ik_1})^2 & \sum_{i=1}^N (J_{Y,ik_1} J_{Y,ik_2}) \\ \sum_{i=1}^N (J_{Y,ik_1} J_{Y,ik_2}) & \sum_{i=1}^N (J_{Y,ik_2})^2 \end{bmatrix}^{-1} \quad 3-112$$

Remy et Degiovanni [83] expliquent que l'estimation est plus précise lorsque les variances sont petites et que les coefficients de corrélation, définis ci-dessous, sont proches de l'unité.

$$Cor(P_{k_1}, P_{k_2}) = \frac{Cov(P_{k_1}, P_{k_2})}{\sqrt{Var(P_{k_1})Var(P_{k_2})}} \quad 3-113$$

Les Tableaux 3-3 et 3-4 donnent respectivement les résultats obtenus en utilisant les matrices de sensibilités réduites de masse et de température. La variance de l'énergie d'activation est la plus faible. Cependant, les matrices de corrélation montrent que les paramètres D_0 et E_a ont une dépendance linéaire et particulièrement lorsque l'on utilise l'évolution de la masse. Il semble donc difficile de les estimer simultanément. Aussi, nous choisissons de fixer la valeur du paramètre D_0 dont la sensibilité est la plus faible.

Masse (g)		
3,0367	0,2445	0,0272
0,2445	0,02	-0,0085
3,0367	0,2445	0,0272
Température (°C)		
0,081	0,0064	0,0089
0,0064	0,0005	0,0003
0,0089	0,0003	0,0145

Tableau 3-14: Matrices de variance et de covariance
(D_0 , E_a , a)

Masse		
1	0,9915	0,0265
0,9915	1	-0,1017
0,0265	-0,1017	1
Température		
1	0,9891	0,2594
0,9891	1	0,1181
0,2594	0,1181	1

Tableau 3-15 : Matrices de corrélation
(D_0 , E_a , a)

3.4.3 Tests numériques

Dans une première phase, un essai d'identification des paramètres est réalisé à partir de valeurs simulées correspondant aux conditions de l'essai en convection N°4 ($T_{air} = 55^\circ\text{C}$ et $v_{air} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$). Les valeurs du coefficient de diffusion introduites

dans le modèle sont les mêmes que pour l'étude des sensibilités (*Valeurs théoriques*, Tableau 3-13). Les cinétiques de séchage simulées sont introduites dans la procédure de minimisation en tant que mesures dans le but de valider la faisabilité de la méthode. La Figure 3-47 présente les évolutions avec un jeu de paramètres initial donné dans le Tableau 3-13 et les paramètres « théoriques ». D_0 est fixé à la valeur exacte. Cette figure montre qu'une faible variation de ces paramètres induit une forte variation du coefficient de diffusion et donc des cinétiques de séchage totalement différentes. La procédure de minimisation est testée en utilisant un critère sur la masse, sur la température et finalement sur les deux. Sans bruit de mesures, l'algorithme converge vers les valeurs exactes quelque soit le critère quadratique pris en compte. Toutefois, la minimisation est plus rapide lorsque l'on utilise uniquement l'évolution de la température.

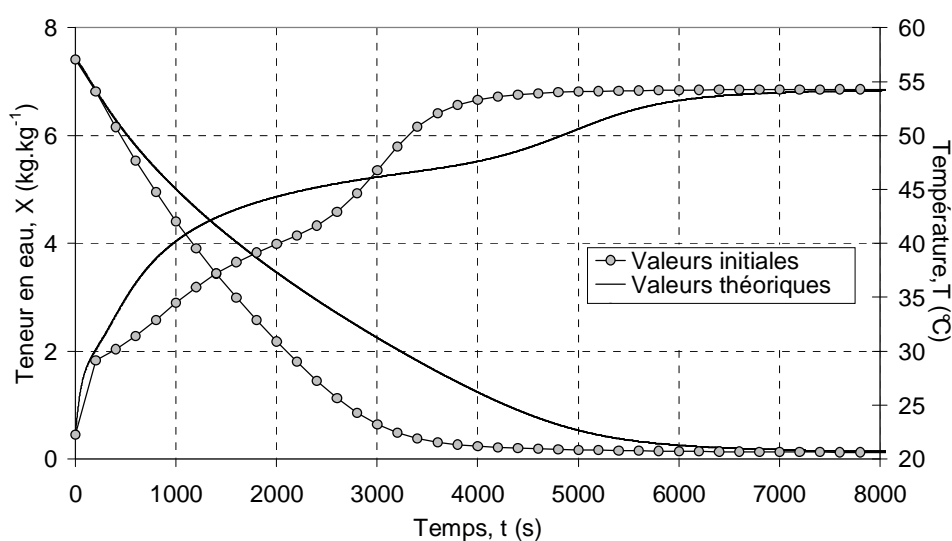


Figure 3-47 : Minimisation sur un cas théorique ($T_{\text{air}} = 55^{\circ}\text{C}$ et $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$)

Le Tableau 3-17 présente les résultats obtenus en introduisant un bruit de mesures de 0,1 g pour la masse et de $2,5^{\circ}\text{C}$ pour la température. Dans ce cas, les résultats obtenus dépendent du critère quadratique choisi. Les erreurs de mesures considérées sont plus importantes sur la température que sur la masse. L'estimation des paramètres est donc moins perturbée lorsque l'on utilise uniquement les mesures de masse. Cependant, l'algorithme converge vers des valeurs très proches des valeurs exactes pour chaque test.

Critère	M	T	M, T
$E_a \text{ (J.mol}^{-1}\text{)}$	32701	32701	32700
a	0,331	0,331	0,332
S	$7 \cdot 10^{-11}$	$6,2 \cdot 10^{-11}$	$1,8 \cdot 10^{-10}$

Tableau 3-16 : Résultats de la méthode inverse sans bruit de mesures

Critère	M	T	M, T
E_a (J.mol ⁻¹)	32689	32776	32582
a	0,336	0,304	0,374
S	$3,5 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$3,3 \cdot 10^{-4}$

Tableau 3-17 : Résultats de la méthode inverse avec bruit de mesures

A titre indicatif, les évolutions des normes quadratiques sont données sur La Figure 3-48. Pour chaque test, la convergence est atteinte en quelques itérations et l'algorithme s'arrête lorsque le critère sur la fonctionnelle est satisfait (Eq 3-107). La stabilité des paramètres n'est pas atteinte avant la neuvième itération.

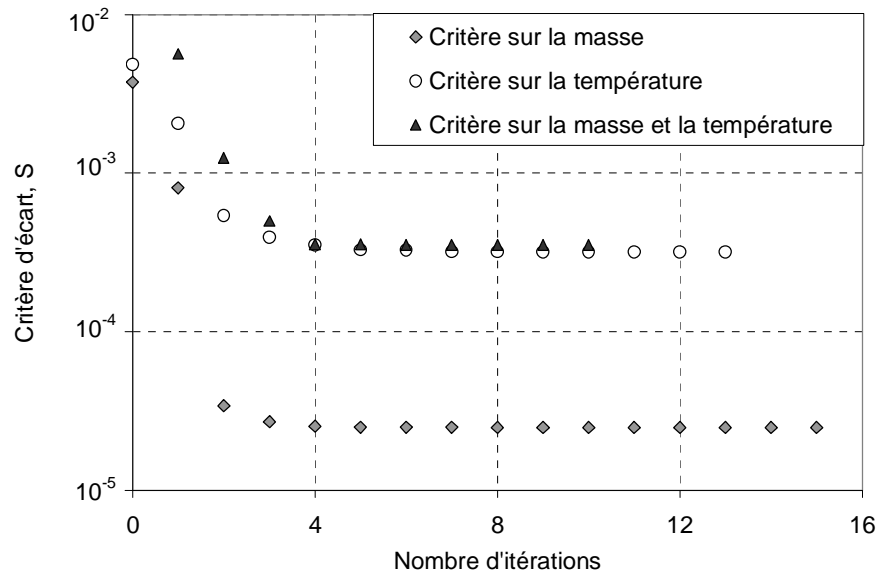


Figure 3-48 : Fonctionnelle

3.4.4 Identification des paramètres

Les paramètres E_a et a sont identifiés à partir de l'essai N°4 mené en convection ($T_{\text{air}} = 55^\circ\text{C}$ et $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$). La température expérimentale prise en compte pour le produit correspond à la moyenne de la température mesurée en surface et au fond du produit (T_{bi}).

Dans un premier temps, nous avons fixé une valeur arbitraire de D_0 ($2 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$). Les valeurs initiales des paramètres ont été fixées comme précédemment à $E_a = 30000 \text{ J.mol}^{-1}$ et $a = 0,5$.

Les résultats obtenus sont donnés dans le Tableau 3-18. Un premier essai a été réalisé en utilisant uniquement l'évolution de la masse. Dans ce cas, puisque l'évolution de la température n'est pas prise en compte, nous avons noté que l'erreur entre les valeurs simulées et expérimentales est significative. Par contre, en utilisant uniquement l'évolution de la température, la procédure de minimisation est plus rapide et l'évolution de masse est correcte. Cependant, des tests complémentaires ont montré que les valeurs estimées de E_a et a dépendent des valeurs initiales choisies.

Aussi, la minimisation est réalisée en minimisant l'écart quadratique prenant en compte la masse et la température du produit.

Critère	M	T	M, T
E_a (J.mol ⁻¹)	29194	28457	28558
a	1	1	1
S	$3 \cdot 10^{-5}$	$9,6 \cdot 10^{-4}$	10^{-3}

Tableau 3-18 : Paramètres estimés ($D_0 = 2 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$)

Plusieurs essais ont été menés en imposant différentes valeurs du paramètre D_0 . Avec un critère sur la masse et la température, l'algorithme converge toujours vers une valeur de un. Puisqu'ils sont corrélés, la valeur optimisée de E_a dépend de celle fixée pour D_0 . Cependant, dans tous les cas, l'algorithme converge vers une valeur d'énergie d'activation telle que l'écart quadratique soit de l'ordre de 10^{-3} . A D_0 fixé, pour chaque jeu de paramètres initial testé, l'algorithme converge vers des valeurs similaires de l'énergie d'activation. Finalement, le jeu de paramètres qui correspond au plus faible écart quadratique est donné dans le Tableau 3-19.

D_0 (m ² .s ⁻¹)	E_a (J.mol ⁻¹)	a	S
$8 \cdot 10^{-7}$	20 430	1	$8 \cdot 10^{-4}$

Tableau 3-19 : Valeurs identifiées

La Figure 3-49 présente le résultat de la procédure de minimisation. L'erreur moyenne sur la teneur en eau est inférieure à $0,2 \text{ kg.kg}^{-1}$. Cela correspond à une erreur sur la masse inférieure au bruit de mesures ($0,2 \text{ g}$). L'évolution de la teneur en eau est correctement représentée. Durant la première phase du séchage, le modèle décrit correctement l'évolution de la température qui est légèrement supérieure à la température de bulbe humide. Durant le régime transitoire, les températures simulées sont légèrement inférieures aux températures expérimentales. D'une façon globale, l'écart de température moyen est de 1°C avec un écart type de $0,85^\circ\text{C}$. Aussi, le résultat de la minimisation peut être considéré comme satisfaisant.

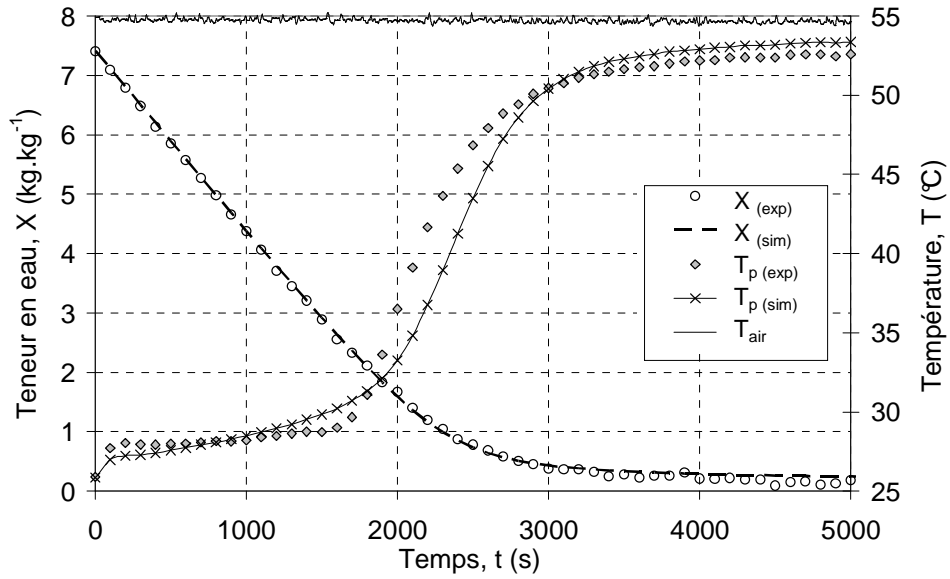


Figure 3-49 : Résultat de la procédure de minimisation

L'identification des paramètres a été menée sur d'autres essais expérimentaux (essai N°1 et N°7). Des valeurs similaires de E_a et a ont été obtenues.

3.5 Confrontation simulation - expérience

Le modèle retenu est à présent validé en confrontant les évolutions expérimentales et simulées de la température et de la teneur en eau du produit, Dans un premier temps, les Figure 3-50 et Figure 3-51 présentent deux essais en convection avec une température d'air de 35°C et une vitesse d'air respective de 1 m.s⁻¹ (essai N°1) et 2,8 m.s⁻¹ (essai N°3).

La prédiction des cinétiques de séchage obtenue avec le coefficient de diffusion calculé précédemment est correcte. En effet, la phase isenthalpe du séchage est correctement représentée dans les deux cas. Les valeurs d'équilibre obtenues (température et teneur en eau) sont conformes à l'expérimentation. Par contre, même si la montée en température du produit est globalement bien représentée par le modèle, la perte d'eau dans cette partie du séchage est légèrement surestimée par le modèle. Ceci peut s'expliquer par une mauvaise appréhension des phénomènes surfaciques. En effet, même si le coefficient de diffusion estimé décroît fortement avec la teneur en eau ($a = 1$) et chute donc considérablement en surface, il semble que l'apport par diffusion soit surestimé lorsque l'activité commence à chuter. L'assèchement superficiel du produit ne semble donc pas uniquement lié au gradient de concentration et à la température du produit.

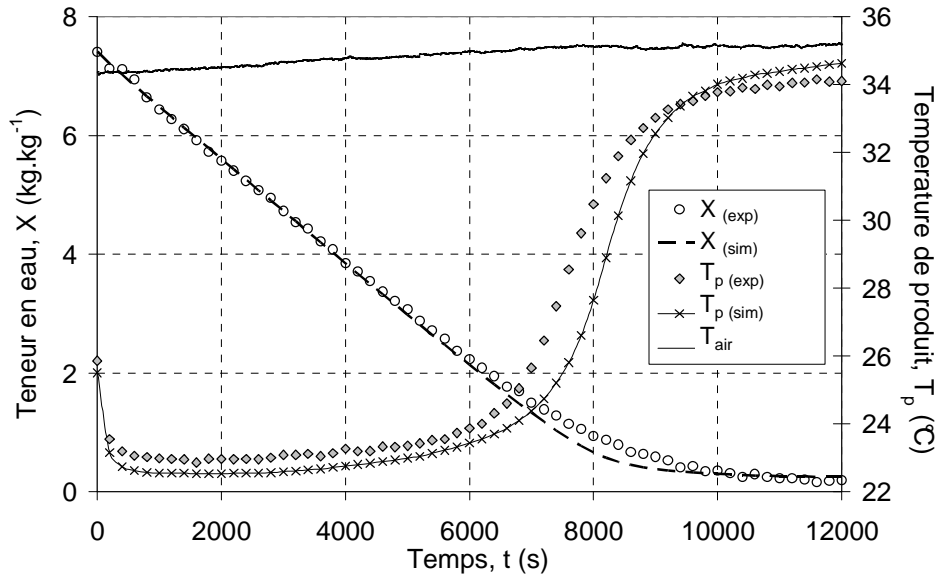


Figure 3-50 : Cinétiques de séchage ($v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$)

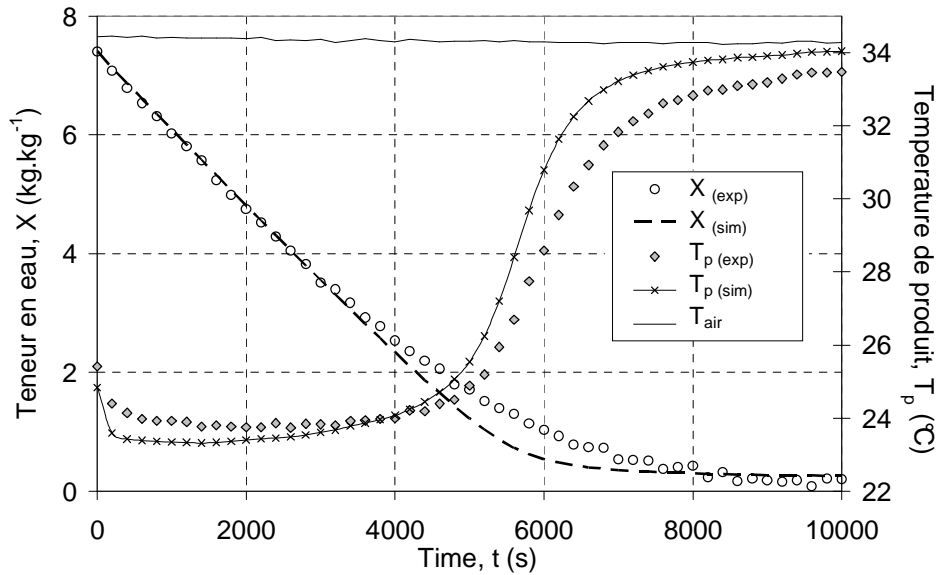


Figure 3-51 : Cinétiques de séchage essai N°3 ($v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$)

La Figure 3-52 présente les cinétiques de séchage expérimentales et simulées de l'essai N° 7 combinant convection et infrarouge ($T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$, $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$). Dans le cas d'un séchage infrarouge, on observe une correspondance satisfaisante entre les résultats expérimentaux et ceux du modèle, notamment pour l'évolution de la teneur en eau. La température lors de la première phase du séchage est légèrement surestimée. Ce résultat peut s'expliquer par les incertitudes sur la détermination de la puissance infrarouge absorbée par le produit. Une étude de sensibilité est menée par la suite.

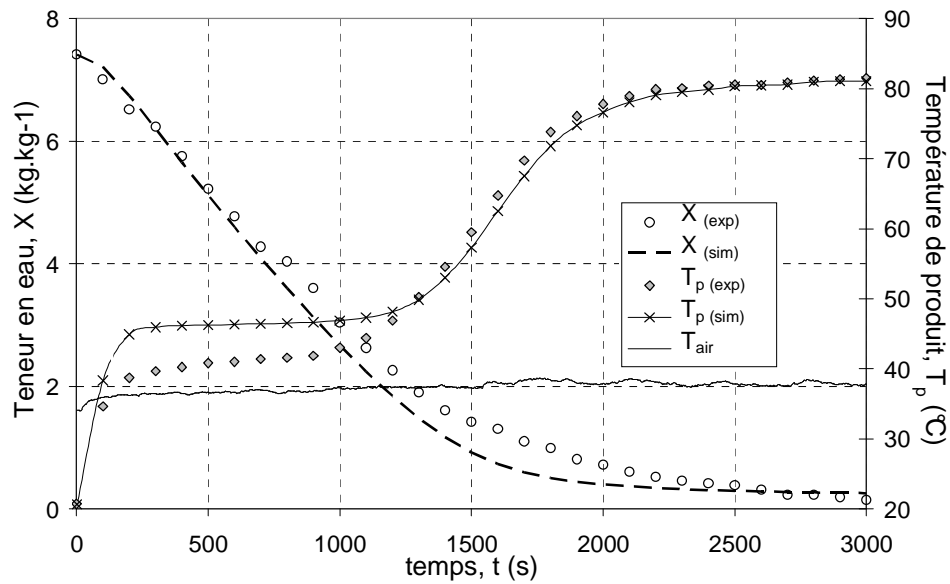


Figure 3-52 : Cinétiques de séchage en infrarouge ($v = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$, $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

Le dernier essai concerne un test réalisé avec un éclairage infrarouge variable (essai N°8). Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 3-53. En ce qui concerne la teneur en eau, la confrontation est satisfaisante durant les 400 premières secondes. Ensuite, on note que l'évolution simulée de la teneur en eau tend vers une valeur inférieure. Ceci s'explique par un phénomène de croûtage observé durant cette expérimentation.

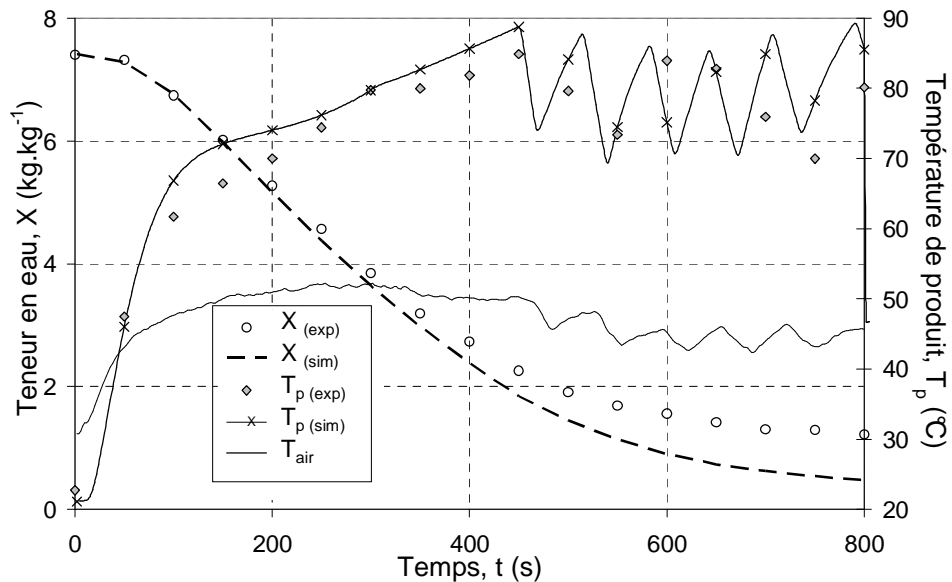


Figure 3-53 : Cinétiques de séchage en infrarouge ($v = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$, P_{IR} variable)

Le modèle de séchage développé permet de décrire correctement l'évolution de la teneur en eau et de la température du produit au cours d'essais de séchage convectifs

et combinés « convection infrarouge ». une étude de sensibilité est maintenant présentée pour conforter cette analyse.

3.6 Etude de sensibilités des paramètres du modèle

De nombreux paramètres introduits dans le modèle ont été déterminés expérimentalement (activité, capacité thermique, masse volumique, coefficient d'absorption,...) ou déduits des cinétiques expérimentales (coefficient de diffusion, coefficient de convection,...). L'importance de bien appréhender le coefficient de diffusion et l'activité du produit a préalablement été démontrée. L'objectif de ce paragraphe est d'étudier la sensibilité du modèle par rapport à deux autres paramètres clefs : le coefficient de convection et le coefficient d'absorption du rayonnement infrarouge.

3.6.1 Coefficient de convection

Dans un premier temps, nous nous intéressons à l'influence du coefficient de convection sur les cinétiques de séchage. Le coefficient de convection a été estimé à partir de la phase isenthalpe d'essais expérimentaux à $36 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ pour une vitesse d'air $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$ (Chapitre 2). La Figure 3-54 présente l'évolution de la température de produit et de la teneur en eau moyenne lorsque le coefficient de convection varie de $\pm 10 \%$ par rapport à cette valeur. Dans ces simulations, les conditions sont : $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 55^\circ\text{C}$ et $H_{\text{air}} = 20\%$). Le flux masse évaporé est directement influencé par la variation du coefficient de convection. Par contre, lors de la phase isenthalpe, la température dépend principalement de l'humidité et de la température de l'air (Température de bulbe humide) et n'est donc pas perturbée par la vitesse d'air. Une erreur sur le coefficient de convection perturbe essentiellement la montée en température.

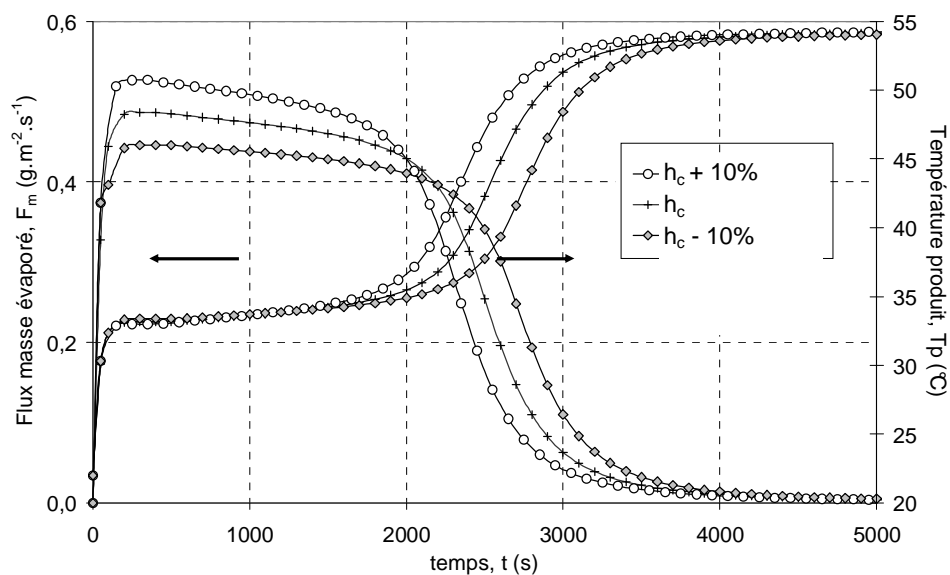


Figure 3-54 : Influence du coefficient de convection
(essai en convection, $v_{\text{air}} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 55^\circ\text{C}$)

La même démarche a été réalisée sur un essai combinant convection et infrarouge dont les conditions sont proches de celles de l'essai N°6 ($v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{air} = 35^\circ\text{C}$, $H_{air} = 20\%$, $P_{IR} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$). Le coefficient de référence est celui estimé à partir de la phase isenthalpe à $19 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 3-55 et sont antagonistes à ceux obtenus en convection. L'influence du coefficient de convection sur le flux masse évaporé est peu significative. L'apport infrarouge permet d'élever la température du produit qui devient alors rapidement supérieure à la température d'air. Plus les échanges convectifs sont favorisés, plus la température finale est faible. Dans ce cas, une erreur sur le coefficient de convection introduit dans le modèle influence principalement la température de la phase isenthalpe et la température finale du produit.

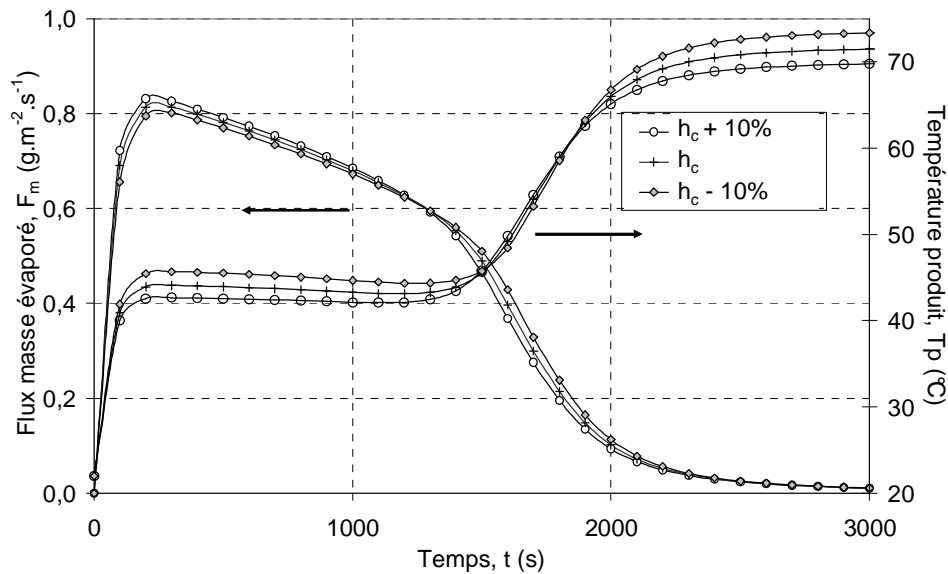


Figure 3-55 : Influence du coefficient de convection
(essai convection + IR, $v = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{air} = 35^\circ\text{C}$, $P_{IR} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

Les simulations réalisées montrent qu'une erreur sur le coefficient de convection n'a pas la même répercussion sur les cinétiques de séchage en convection et en infrarouge. A titre indicatif, le coefficient de convection a aussi été estimé par méthode inverse sur la totalité des cinétiques de plusieurs essais de séchage convectifs et infrarouges. Les valeurs moyennes obtenues sont très proches de celles estimées à partir de la phase isenthalpe ($h_{cp} = 38 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ pour $v_{air} = 2,8 \text{ m.s}^{-1}$ et $h_{cp} = 20 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ pour $v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$) ce qui permet de valider les valeurs introduites dans le modèle. Par contre, au cours du séchage, du fait de la diminution de l'épaisseur du produit, le coefficient de convection évolue. A la vue de l'étude de sensibilité qui a été menée, il semble qu'une amélioration intéressante du modèle pourrait consister à prendre en compte cette variation.

3.6.2 Coefficient d'absorption du rayonnement infrarouge

Il s'agit à présent de quantifier l'influence du coefficient d'absorption du produit au cours du séchage. Comme pour l'étude précédente, les simulations sont réalisées dans des conditions proches de celle de l'essai N°6. Le coefficient d'absorption,

contrairement au coefficient de convection évolue au cours du séchage en fonction de l'épaisseur et donc de la teneur en eau. Nous avons choisi de faire varier le coefficient d'extinction du produit qui est lié au coefficient d'absorption par la relation (2-56) de $\pm 10\%$. La Figure 3-56 donne alors l'évolution du coefficient d'absorption de l'ensemble boîte + produit et les limites retenues pour cette étude de sensibilité.

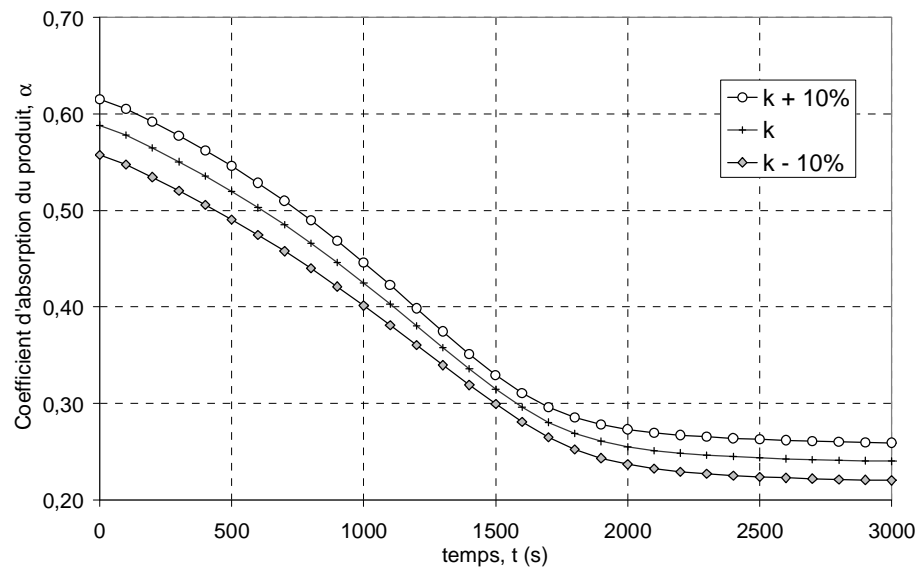


Figure 3-56 : Variation du coefficient d'absorption
(essai convection + IR, $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 35^{\circ}\text{C}$, $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

La **Figure 3-57** présente l'évolution de la teneur en eau et de la température pour différentes valeurs du coefficient d'extinction. Les cinétiques obtenues montrent l'importance de bien évaluer l'impact des infrarouges sur le produit. Une faible variation des apports infrarouges fournis au produit se traduit par une variation significative de la température, notamment en fin de séchage. De plus, le flux d'eau évaporé, qui est lié à la température du produit, est directement influencé par une variation du coefficient d'absorption du produit.

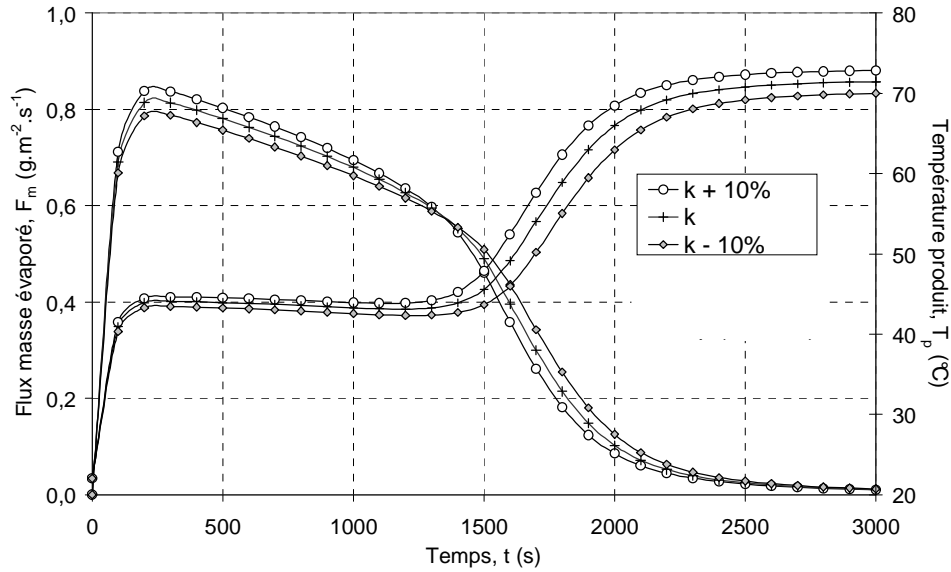


Figure 3-57 : Influence du coefficient d'extinction
(essai convection + IR, $v_{\text{air}} = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $T_{\text{air}} = 35^\circ\text{C}$, $P_{\text{IR}} = 3,7 \text{ kW.m}^{-2}$)

3.7 Conclusion

Après avoir présenté les équations relatives aux transferts de masse et de chaleur en introduisant une vitesse de référence volumique et en parallèle une vitesse de référence barycentrique, deux modèles basés sur ces approches différentes sont développés. Le système d'équations est résolu dans un repère fixe. Le passage du repère mobile au repère fixe se fait par la transformée de Landau dans le premier cas et par un changement de coordonnées eulériennes en lagrangiennes dans le second. L'analyse du champ de fractions volumiques d'eau et du champ de température lors d'essais en convection et en convection-infrarouges a montré que la diffusion de l'eau en surface devient vite le facteur limitant du procédé de séchage. Du fait de la forte teneur en eau initiale et de l'épaisseur importante de produit, des forts gradients de concentrations apparaissent au sein du produit. De plus, le gradient de température au sein du produit est faible. L'hypothèse d'une température homogène a été retenue pour ce produit. Les simulations menées ont permis de mettre en avant l'efficacité de l'approche barycentrique qui permet de limiter les temps de calcul et de réduire les problèmes de convergence numérique.

Pour obtenir une représentation satisfaisante des cinétiques de séchage, le coefficient de diffusion a été estimé par méthode inverse. L'expression retenue fait intervenir trois paramètres à identifier. Une étude de sensibilité couplée à une approche stochastique du problème a montré la difficulté de les estimer en même temps. Toutefois l'introduction de contraintes dans la procédure de minimisation notamment sur la valeur initiale du coefficient de diffusion, nous a permis à partir des relevés expérimentaux de masse et de température, de déterminer un jeu de paramètres.

La confrontation des résultats expérimentaux avec les simulations a permis de valider le modèle en convection et en infrarouge. L'analyse de sensibilité a mis en avant l'importance de bien évaluer le coefficient de convection et d'absorption du mélange pour décrire correctement le comportement thermo-hydrigue du produit.

Pour améliorer le modèle, une perspective intéressante serait certainement d'introduire l'évolution du taux de cristallinité du produit. Ceci permettrait peut être de mieux comprendre les raisons de l'assèchement superficiel qui a été observé.

Chapitre 4

Optimisation du séchage

Les études expérimentales et numériques présentées ont montré l'incidence des apports infrarouges sur le temps de séchage mais aussi la nécessité de moduler ces apports. En effet, lorsque la température de la boîte se rapproche de 90°C, celle-ci se déforme ce qui engendre des tensions au niveau du produit. De plus, lorsque les sollicitations sont trop importantes, des stries apparaissent à la surface du polymère. Bien que la surface soit presque sèche, il reste de l'eau au sein du produit. Cet assèchement superficiel se traduit par un gradient de teneur en eau important au sein du produit.

Dans ce chapitre, on s'intéresse au calcul hors ligne de la densité de flux infrarouge permettant de respecter les objectifs et contraintes suivants :

- **minimiser le temps de séchage** afin d'augmenter la productivité. Pour obtenir un séchage rapide, il faut maximiser le flux masse évaporé qui est une fonction croissante de la température. Minimiser le temps de séchage revient alors à chercher une température de produit maximale.
- **éviter les déformations de la boîte** : La température du système doit rester inférieure à la température de 90°C pour laquelle la boîte se déforme.
- **limiter les gradients de teneur en eau** dans le produit afin de contrôler la teneur en eau en surface.
- **minimiser la consommation énergétique** du procédé afin de limiter les coûts de production.

Pour optimiser le procédé, le modèle décrit au chapitre précédent est utilisé pour simuler le comportement thermohydrique du produit. Comme le montre la Figure 4-58, dans la suite de l'étude, les conditions aérauliques ont été fixées à : $T_{air} = 35^{\circ}\text{C}$, $H_{air} = 20\%$ et $v_{air} = 1 \text{ m.s}^{-1}$. Les variables de sortie utilisées sont la teneur en eau et la température du produit.

Dans un premier temps, une loi de commande est déterminée en régulant la température du produit et testée en boucle ouverte sur un essai expérimental. Dans une deuxième phase, afin de tenir compte de la consommation énergétique et de la qualité du produit final, nous avons défini un critère quadratique.

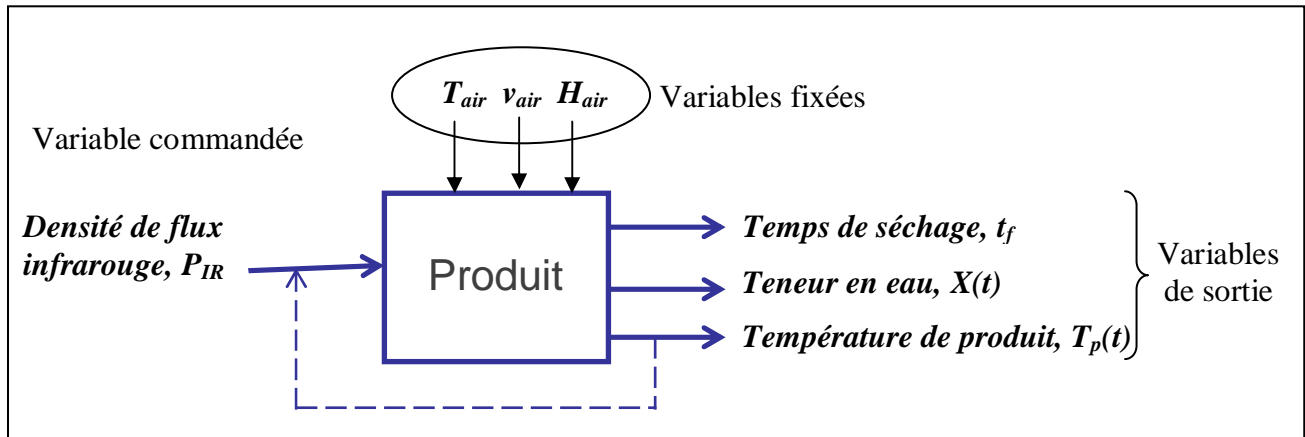


Figure 4-58 : Schéma de principe

4.1 Approche par régulation

Dans cette approche, la température du produit est assujettie à une température de consigne par le biais d'une régulation de type proportionnel. La valeur de consigne T_{cons} a été fixée à une température inférieure à la température de déformation de la boîte soit ($T_{cons} = 88^{\circ}\text{C}$). Une correction de type proportionnel a été choisie (Figure 4-59):

$$\begin{cases} P_{IR} = P_0 [K\varepsilon(t) + u] & \text{avec } \varepsilon(t) = T_{cons} - T_p(t) \\ \text{si } P_{IR} < 0 & \text{alors } P_{IR} = 0 \\ \text{si } P_{IR} > P_0 & \text{alors } P_{IR} = P_0 \end{cases} \quad 4-114$$

avec P_0 la densité de flux infrarouge maximale.

Le modèle est utilisé avec 50 nœuds et un pas de temps de 0,05s. Pour des raisons technologiques, la commande est modifiée seulement toutes les 10 secondes. Les valeurs du gain du régulateur (K) et de la constante (u) sont déterminées de façon à obtenir une réponse stable sans dépassements de la consigne et avec un faible écart entre la sortie et la consigne en régime permanent. La commande appliquée aux émetteurs a été déterminée pour différents niveaux maximums de puissance ($8 \text{ kW.m}^{-2} < P_0 < 16 \text{ kW.m}^{-2}$).

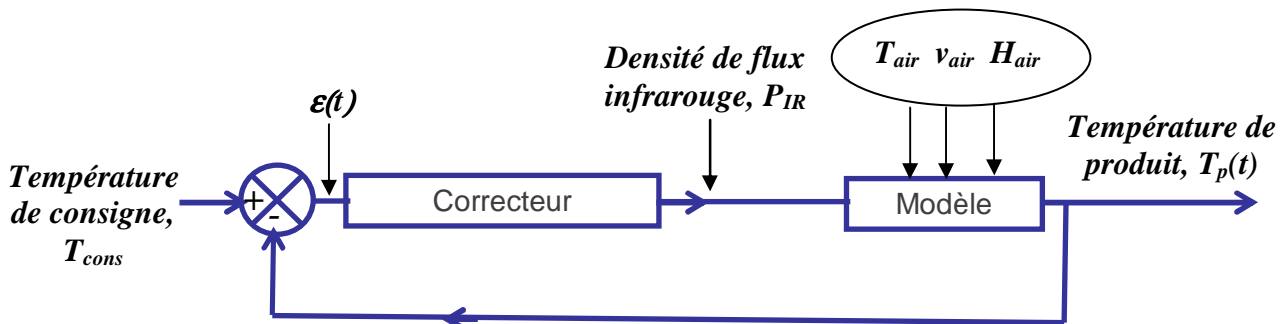
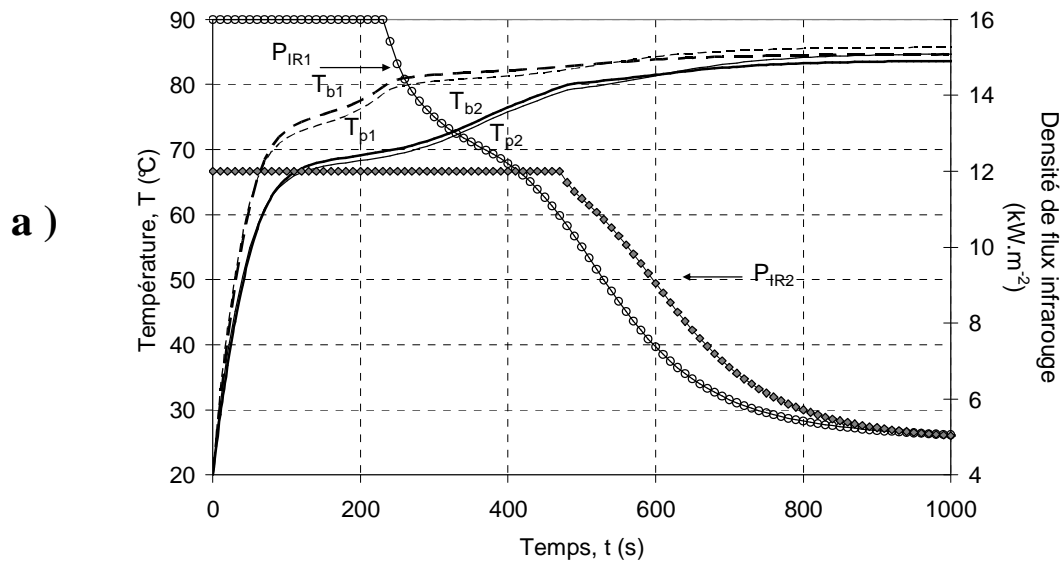


Figure 4-59 : Régulation en boucle fermée

La Figure 4-60 présente l'évolution de la densité de flux infrarouge, des températures et des teneurs en eau pour $P_0 = 16 \text{ kW.m}^{-2}$ (cas n°1) et $P_0 = 12 \text{ kW.m}^{-2}$ (cas n°2). Dans ces deux essais, on peut distinguer trois phases dans l'évolution de la densité de flux infrarouge. Tout d'abord, un palier qui correspond à la valeur maximale P_0 pendant lequel la montée en température est très rapide. Puis, lorsque le produit atteint une température proche de 80°C , la densité de flux diminue progressivement. La température reste ainsi inférieure à la température de consigne. Au final, la température se stabilise pour une valeur de puissance d'environ 5 kW.m^{-2} . Sachant que le coefficient d'absorption globale de la boîte et du produit est d'environ 20% en fin de séchage, cela correspond à la densité de flux infrarouge nécessaire pour maintenir le produit sec à la température de consigne et compenser les pertes par rayonnement et par convection avec de l'air à 35°C .

Avec une densité de flux infrarouge de 16 kW.m^{-2} (cas n°1), la température de produit atteint 80°C en moins de 300 s. A cet instant, le produit est toujours à une teneur en eau importante ($X > 3 \text{ kg.kg}^{-1}$). La densité de flux infrarouge diminue progressivement jusqu'à la fin du séchage où la température est alors de 85°C . Pour une densité de flux limitée à 12 kW.m^{-2} (cas n°2), la durée du premier palier est pratiquement doublée. Dans ce cas, lorsque la densité de flux infrarouge commence à diminuer, le gradient de teneur en eau dans le produit est proche de sa valeur maximale et la surface est déjà presque sèche (Figure 4-60).



b)

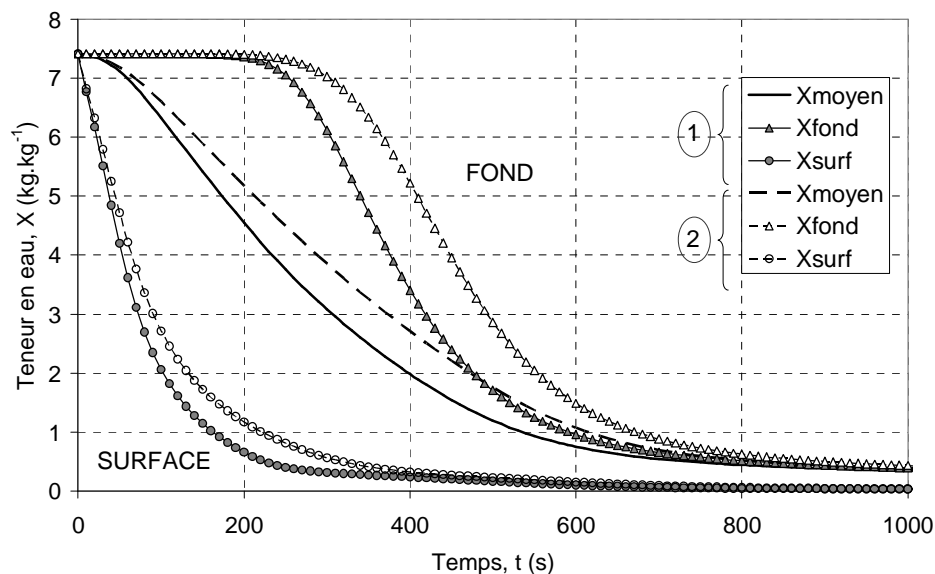


Figure 4-60 : Réponses simulées dans le cas d'une régulation de type proportionnel

a) Evolutions des températures et de la densité de flux infrarouge

b) Evolutions des teneurs en eau (moyennes, à la surface et à l'interface boîte-produit) en fonction du temps (cas n°1 : $P_0 = 16 \text{ kW.m}^{-2}$, cas n°2 : $P_0 = 12 \text{ kW.m}^{-2}$)

L'éclairement infrarouge déterminé dans le cas n°2 a été testé lors d'un essai expérimental (Figure 4-61). On a réalisé une commande en boucle ouverte en imposant l'éclairement infrarouge préalablement déterminé. Les résultats expérimentaux sont confrontés aux cinétiques obtenues par simulation pour les mêmes conditions. L'évolution de la teneur en eau est globalement bien représentée. Même si le modèle surestime la température entre 100 s et 600 s, l'évolution de la température est globalement bien représentée. Notons que lors de cet essai, la mise en route des émetteurs est d'environ 30 secondes ce qui n'est pas négligeable.

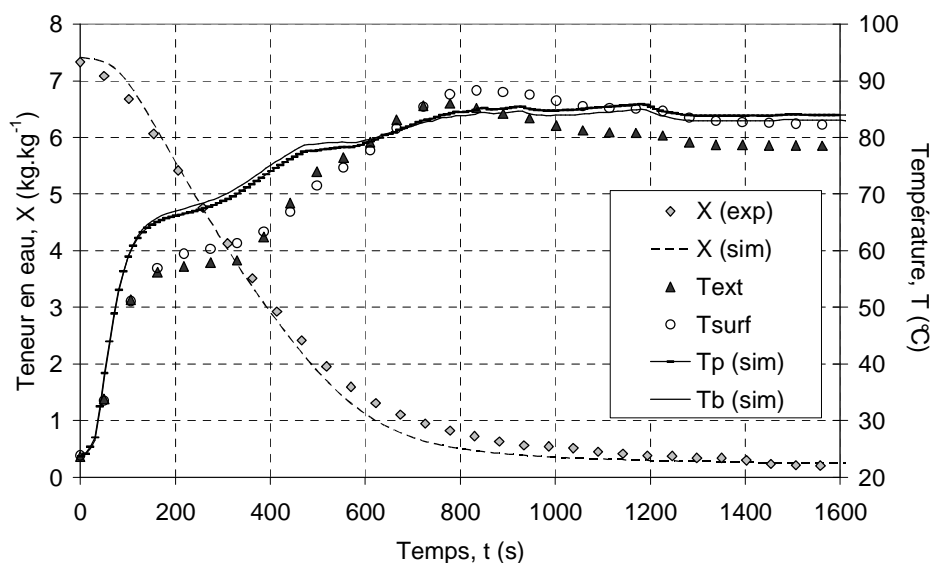


Figure 4-61 : Confrontation entre les réponses expérimentales et simulées pour un éclairement IR maximal de 12 kW.m^{-2}

Des tests numériques ont ainsi été menés pour trois éclairagements. Le Tableau 4-20 donne à titre indicatif le temps pour une teneur en eau moyenne $X_f = 1 \text{ kg.kg}^{-1}$. Pour ces essais, un critère d'efficacité énergétique a été également évalué [74] :

$$\eta = \frac{\Delta M}{Q} \quad 4-115$$

avec ΔM la variation de la masse d'eau contenue dans le produit. La température d'air est constante ($T_{air} = 35^\circ\text{C}$). L'apport d'énergie au produit se fait uniquement par infrarouge :

$$Q = \int_0^{t_f} P_{IR} S dt \quad \text{avec} \quad Q \text{ en kWh} \quad 4-116$$

	Densité de flux infrarouge maximale $P_0 \text{ (kW.m}^{-2}\text{)}$	Temps de séchage (s) pour $X_f = 1 \text{ kg.kg}^{-1}$	Efficacité énergétique $\text{(kg.kWh}^{-1}\text{)}$
1	16	540	0,51
2	12	610	0,54
3	8	800	0,6

Tableau 4-20 : Temps de séchage et efficacité énergétique pour trois niveaux de puissance maximale.

Ces résultats montrent que l'utilisation d'une densité de flux infrarouge importante permet de diminuer le temps de séchage mais en contre partie la consommation d'énergie augmente. Si l'on compare par contre le cas 1 et 2, le temps de séchage a peu augmenté (13%) alors que l'efficacité énergétique est passée de 0,51 à 0,54 ce qui correspond à une diminution de la consommation d'énergie d'environ 5%. De plus, lorsque les sollicitations sont trop importantes, le produit subit des contraintes thermiques plus grandes.

L'utilisation d'une commande proportionnelle ne permet pas de trouver un juste compromis entre temps de séchage, consommation énergétique et qualité du produit finale. La suite de ce chapitre est donc consacrée au développement d'une commande optimale.

4.2 Commande optimale

L'objectif est de déterminer, par la minimisation d'une fonctionnelle avec contraintes, la densité de flux infrarouge. Le critère quadratique prend en compte des critères sur la teneur en eau et la température du produit. Du fait de la complexité du modèle qui induit des temps de calcul importants, la résolution de ce problème est menée hors ligne. Le comportement du produit au cours du séchage est décrit par le

modèle développé au chapitre précédent. Dans ce cas, on exploite l'évolution de deux variables d'état : la température et la teneur en eau (Figure 4-62).

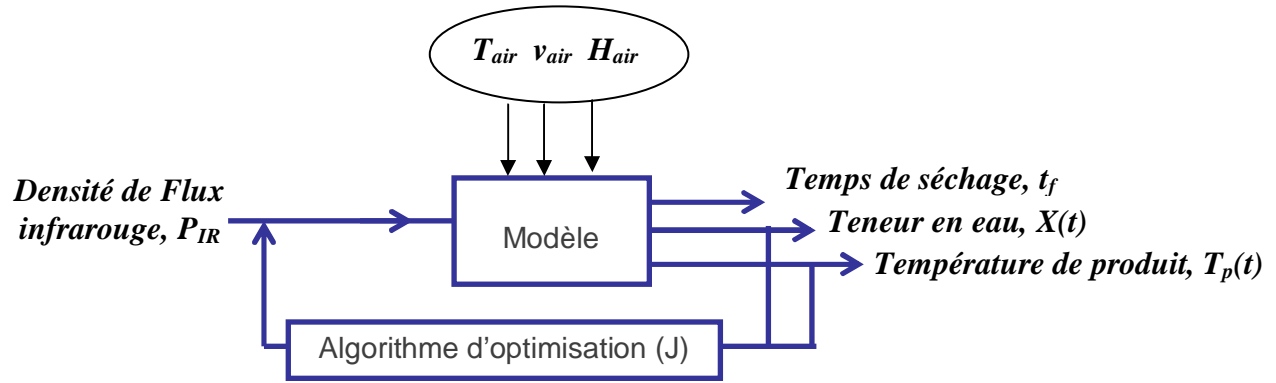


Figure 4-62 : Commande optimale hors ligne

L'une des principales difficultés dans une démarche de commande optimale est de définir un critère représentatif des différents objectifs que l'on s'est fixé. Dans cette étude, le critère à minimiser est constitué de plusieurs termes :

- Pour influencer sur le **temps de séchage minimum**, on prend en compte l'écart entre la température de produit et une température de consigne (85°C dans ce cas).

$$J_A = \frac{1}{2} \int_0^{t_f} \left[\frac{T_p(t) - T_{cons}}{T_{cons}} \right]^2 dt \quad 4-117$$

- En ce qui concerne la consommation d'énergie, le terme suivant est introduit :

$$J_B = \frac{1}{2} \int_0^{t_f} \left[\frac{P_{IR}}{P_o} \right]^2 dt \quad 4-118$$

- Enfin, un critère sur la qualité finale du produit est introduit pour ne pas atteindre des teneurs en eau trop faibles en surface. Nous avons choisi de prendre en compte la vitesse de variation de la teneur en eau, soit :

$$J_C = \frac{1}{2} \max^2 \left(\frac{\partial X(t)}{\partial t} \right)_{surf} \quad 4-119$$

Si l'on prend en compte l'ensemble de ces termes, l'objectif est donc de déterminer l'éclairement infrarouge correspondant à la minimisation du critère quadratique suivant :

$$J(P_{IR}) = A \frac{1}{2} \int_0^{t_f} \left[\frac{T_p(t) - T_{cons}}{T_{cons}} \right]^2 dt + B \frac{1}{2} \int_0^{t_f} \left[\frac{P_{IR}(t)}{P_0} \right]^2 dt + C \frac{1}{2} \max^2 \left(\frac{\partial X(t)}{\partial t} \right)_{surf} \quad 4-120$$

avec A , B et C des coefficients de pondération.

Dans ces travaux, la densité de flux infrarouge est déterminée avec un pas de temps de 50 secondes et interpolée par splines cubiques.

En ce qui concerne les contraintes, l'étude menée en régulation a montré que la loi de commande permettant de satisfaire cet objectif est une fonction décroissante de la densité de flux et que cette évolution se fait progressivement tout au long du séchage. Les contraintes introduites sur la densité de flux et sur sa dérivée sont alors les suivantes :

$$0 < \frac{dP_{IR}}{dt} < 500 \text{ kW.m}^{-2}.\text{s}^{-1} \text{ et } 0 \leq P_{IR} \leq P_0 \quad 4-121$$

avec P_0 la densité de flux infrarouge maximale ($P_0 = 16 \text{ kW.m}^{-2}$)

L'algorithme d'optimisation de Levenberg-Marquardt est utilisé. Pour limiter les temps de calculs, le nombre de nœuds introduits dans le modèle développé précédemment est réduit à 25, ce qui permet d'obtenir des temps de calcul de l'ordre de 3 secondes. A titre indicatif, pour ce nombre de nœuds en prenant pour référence un maillage contenant 200 nœuds et pour un éclairage de $3,7 \text{ kW.m}^{-2}$, on a une précision de 4% sur la température et inférieure à 1% sur la teneur en eau moyenne.

Dans un premier temps, nous avons cherché un compromis entre temps de séchage et consommation énergétique ($C = 0$), puis entre temps de séchage et qualité finale du produit ($B = 0$). Après avoir validée la démarche sur un cas expérimental, on prend en compte l'ensemble des objectifs.

4.2.1 Minimisation de la consommation d'énergie

Dans ce cas, la fonction à minimiser est définie par :

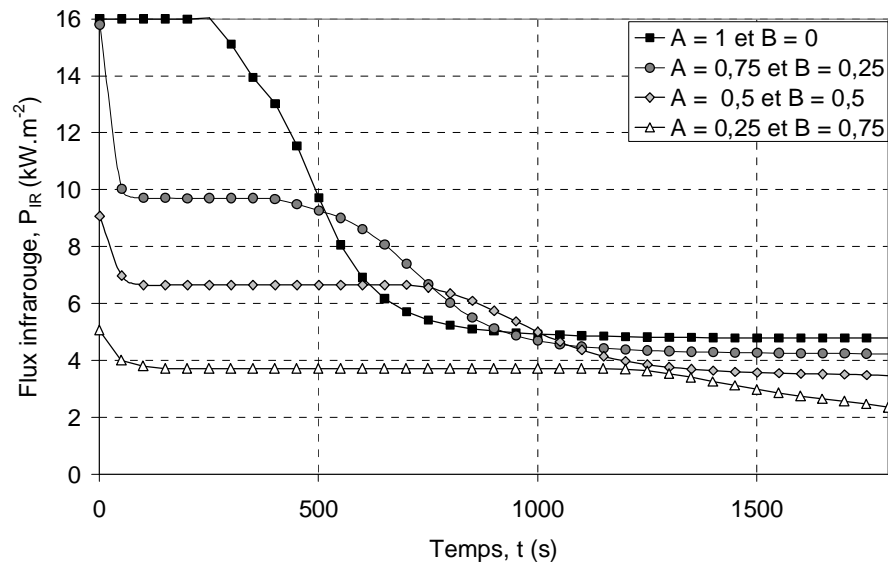
$$J(P_{IR}) = A \frac{1}{2} \int_0^{t_f} \left[\frac{T_p(t) - T_{cons}}{T_{cons}} \right]^2 dt + B \frac{1}{2} \int_0^{t_f} \left[\frac{P_{IR}(t)}{P_0} \right]^2 dt \quad 4-122$$

avec A et B des coefficients de pondération tels que $A+B = 1$.

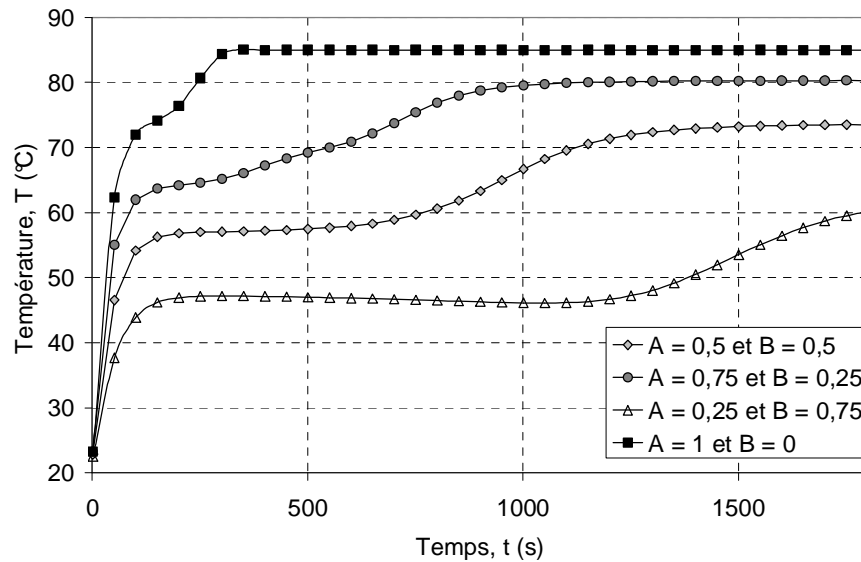
L'écart quadratique sur la température et le terme lié à l'énergie sont adimensionnés de façon à avoir le même ordre de grandeur pour les deux termes. Selon les valeurs choisies pour A et B , on peut donner plus de poids au temps de séchage ou à la consommation d'énergie, ou encore chercher un compromis.

Les Figures 4-7 a,b et c présentent respectivement l'évolution de la densité de flux infrarouge, de la teneur en eau et de la température pour quatre essais d'optimisation. Lorsque la consommation énergétique n'est pas prise en compte ($A = 1$ et $B = 0$), les résultats obtenus sont similaires à ceux présentés lors de l'étude en régulation. La minimisation de l'énergie implique la mise en jeu de densités de flux infrarouges plus faibles. Après une courte période transitoire, celle-ci est constante quelque soit les critères choisis pendant plusieurs minutes et ne diminue que lorsque la température est proche de sa valeur maximale. Lorsque la consommation d'énergie est prise en compte, la température finale est inférieure à 85°C .

a)



b)



c)

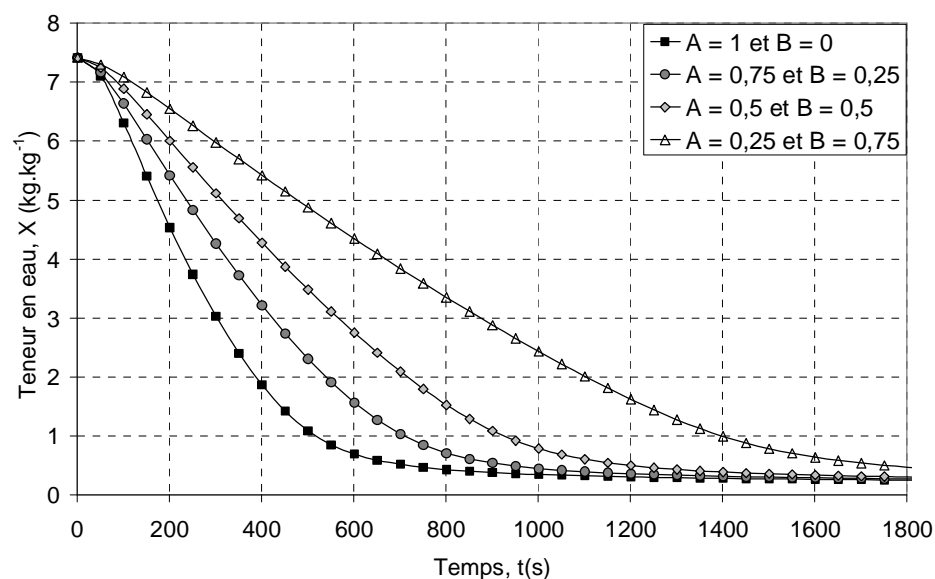


Figure 4-63 : Compromis entre le temps de séchage et la consommation d'énergie
Evolution des densités de flux infrarouge (a), des températures (b) et des teneurs en eau (c) en
fonction du temps pour différentes pondérations

Le Tableau 4-21 présente pour les différents essais les temps de séchage obtenus et l'efficacité énergétique pour une teneur en eau finale de 1 kg.kg^{-1} . Pour l'essai 2 ($A = 0,75$ et $B = 0,25$), même si le poids donné à la consommation est relativement faible, l'efficacité énergétique passe de 0,5 à 0,57 ce qui correspond à une économie d'énergie d'environ 12%. Le temps de séchage reste raisonnable (12 min). Pour l'essai 3, la densité de flux infrarouge reste inférieure à 10 kW.m^{-2} . La consommation d'énergie est donc encore diminuée (22% par rapport à l'essai N°1). Le temps de séchage est alors proche de 15 min. Le dernier essai réalisé en donnant plus de poids à la consommation énergétique ($A = 0,25$ et $B = 0,75$) montre clairement que la consommation énergétique ne peut pas être réduite d'avantage si l'on veut conserver un temps de séchage raisonnable.

	A	Temps de séchage (s) pour $X_f = 1 \text{ kg.kg}^{-1}$	Efficacité énergétique (kg.kWh^{-1})
1	1	540	0,5
2	0,75	708	0,57
3	0,5	926	0,63
4	0,25	1400	0,74

Tableau 4-21 : Temps de séchage et efficacité énergétique pour différentes pondérations

Les différents cas présentés dans cette étude sont représentatifs de l'ensemble des solutions de ce problème (Figure 4-64) [84]. Il est donc raisonnable d'envisager que la solution adéquate permettra d'atteindre un temps de séchage compris entre 10 et 15 min avec une efficacité énergétique comprise entre 0,5 et 0,7.

Au final, la commande optimale s'avère une solution efficace pour trouver un compromis entre le temps de séchage et la consommation énergétique. Le dernier choix est laissé à l'utilisateur. La même démarche est à présent appliquée pour trouver un compromis entre le temps de séchage et la qualité du produit finale.

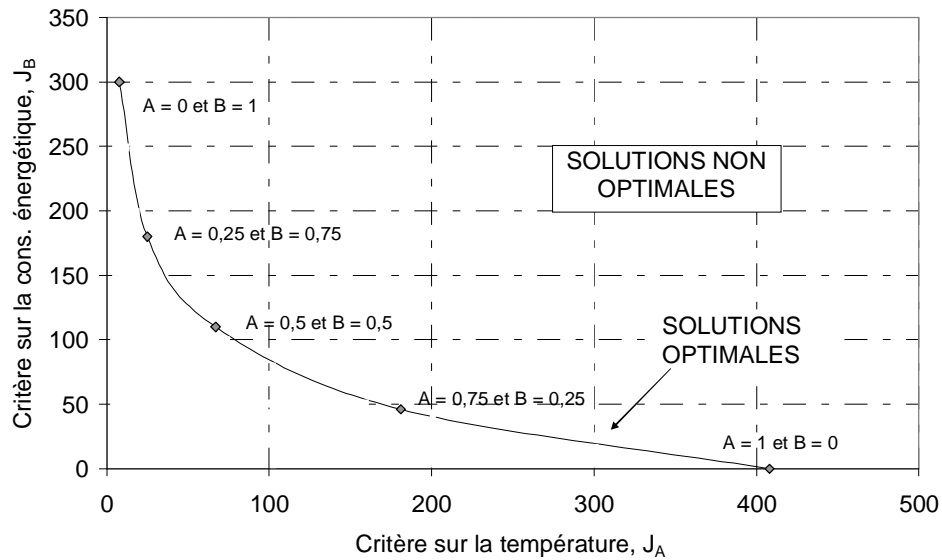


Figure 4-64 : Représentation des solutions optimale (courbe de Pareto)

4.2.2 Prise en compte de la qualité du produit

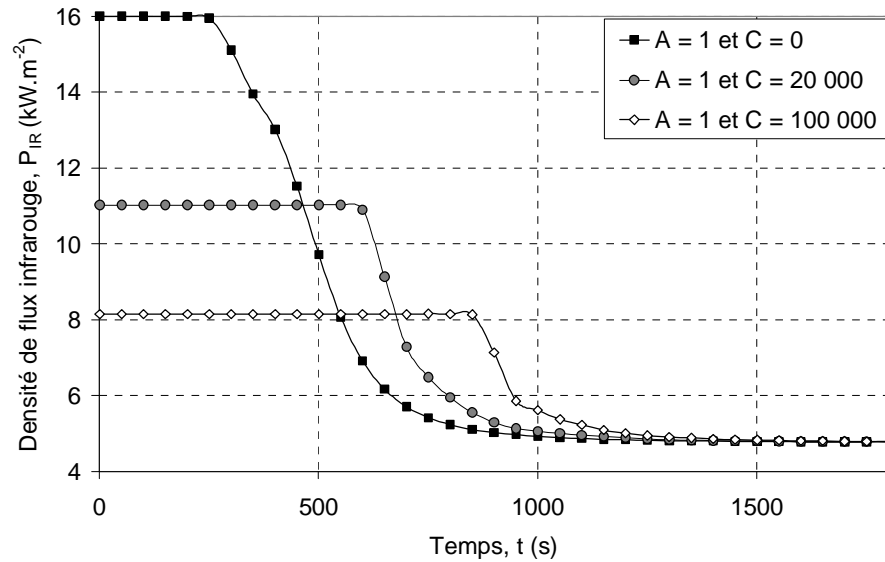
Dans ce cas, l'objectif est d'obtenir un compromis entre le temps de séchage et la qualité du produit. La commande optimale mise en place doit permettre de minimiser le temps de séchage et l'évolution de la teneur en eau superficielle afin d'éviter la formation de stries en surface et donc d'améliorer la qualité du produit final. Plusieurs tests ont été réalisés pour définir un critère représentatif de cet objectif, notamment en introduisant un critère sur l'écart entre la teneur en eau de surface et celle à l'interface boîte-produit ou à une position intermédiaire. Finalement, les meilleurs résultats ont été obtenus en tenant compte de la vitesse de séchage en surface, soit en posant :

$$J(P_{IR}) = A \frac{1}{2} \int_0^{t_f} \left[\frac{T_p(t) - T_{cons}}{T_{cons}} \right]^2 dt + C \frac{1}{2} \max^2 \left(\frac{\partial X(t)}{\partial t} \right)_{surf} \quad 4-123$$

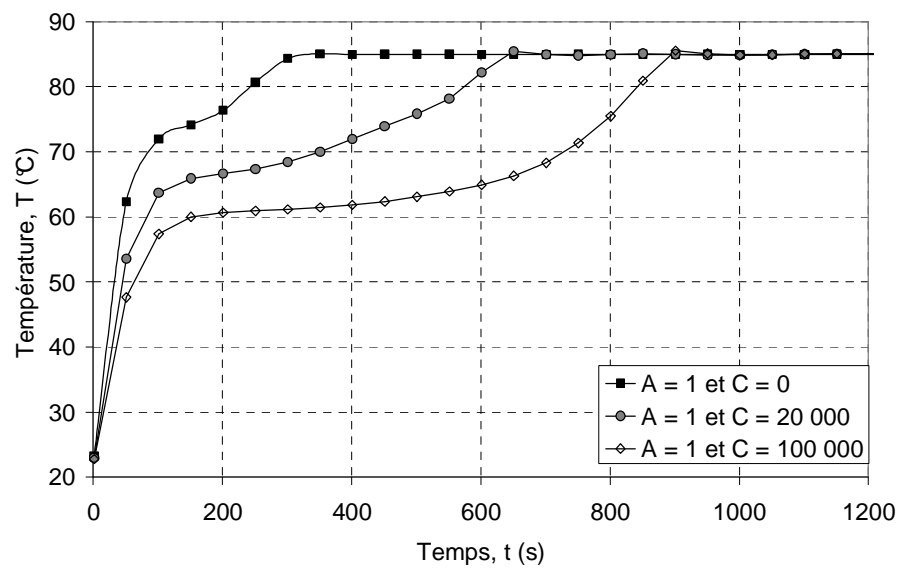
Dans cette étude, A est fixé à 1. La contrainte sur l'évolution de la teneur en eau de surface n'étant pas adimensionnée, le coefficient de pénalité C prend des valeurs supérieures à 1. Les Figures 4-9 a,b et c donnent l'évolution de la densité de flux infrarouge, de la température et de la teneur en eau moyenne pour $C = 10^5$ et $C = 2 \cdot 10^4$.

Pour minimiser la vitesse de séchage en surface, l'algorithme converge vers une loi de commande ayant le même profil que lors de la minimisation de la consommation énergétique (palier et chute lente de la densité de puissance). La densité de flux initiale est d'autant plus faible que la pondération C est importante. Quelques soient les pondérations choisies, la température finale est de 85°C et la densité de flux infrarouge tend vers une valeur d'équilibre de $4,8 \text{ kW.m}^{-2}$.

a)



b)



c)

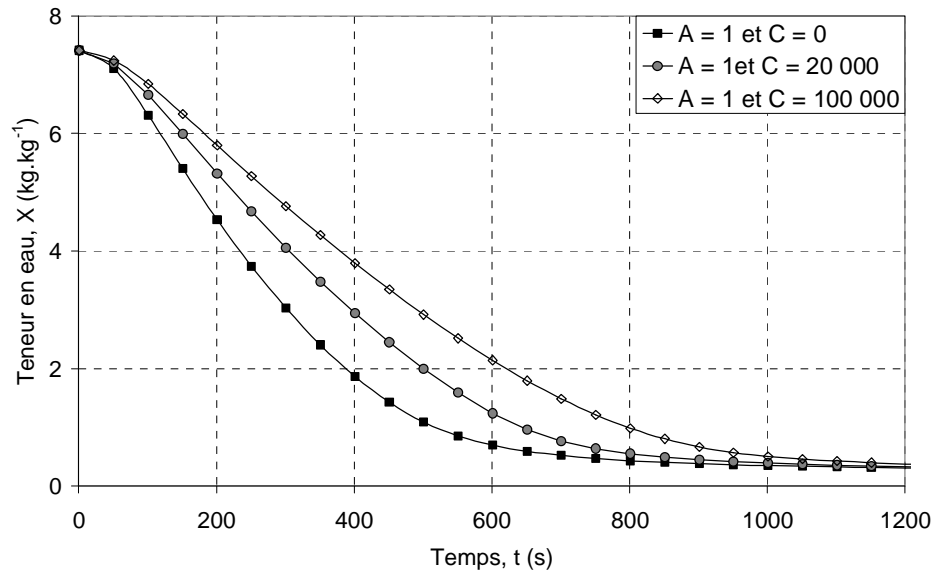


Figure 4-65 : Compromis entre le temps de séchage et la teneur en eau superficielle
a) Evolution des densités de flux infrarouge b) Evolution des températures
c) Evolution des teneurs en eau moyenne en fonction du temps pour différentes pondérations

La Figure 4-66 donne l'évolution de la teneur en eau de surface et à l'interface boîte-produit pour les deux cas optimisés. Cette figure montre que l'introduction d'un terme lié à la vitesse de séchage en surface a permis de limiter l'assèchement superficiel. En effet, au bout de 200 s, lorsqu'aucun critère de qualité n'est introduit, la teneur en eau de surface est déjà faible de l'ordre de $0,65 \text{ kg.kg}^{-1}$. Par contre, dès lors que le critère est introduit, l'eau est encore présente en quantité dans le produit ($X_{surf} = 1,3 \text{ kg.kg}^{-1}$ pour $C = 2 \cdot 10^4$ et $X_{surf} = 1,9 \text{ kg.kg}^{-1}$ $C = 10^5$). Lorsque l'on diminue la vitesse de variation de la teneur en eau en surface, c'est la teneur en eau dans l'ensemble du produit qui diminue moins vite. En effet, l'évolution de l'écart entre la teneur en eau de surface et la teneur en eau au fond de la boîte est donnée sur la Figure 4-66. Quelque soit l'essai considéré, le gradient de teneur en eau au sein du produit est relativement le même. A l'inverse, la vitesse de séchage en surface varie beaucoup entre les essais et atteint des valeurs maximales assez éloignées (Tableau 4-22). Ceci justifie le choix d'un critère basé sur la vitesse de séchage plus que sur un écart de teneurs en eau.

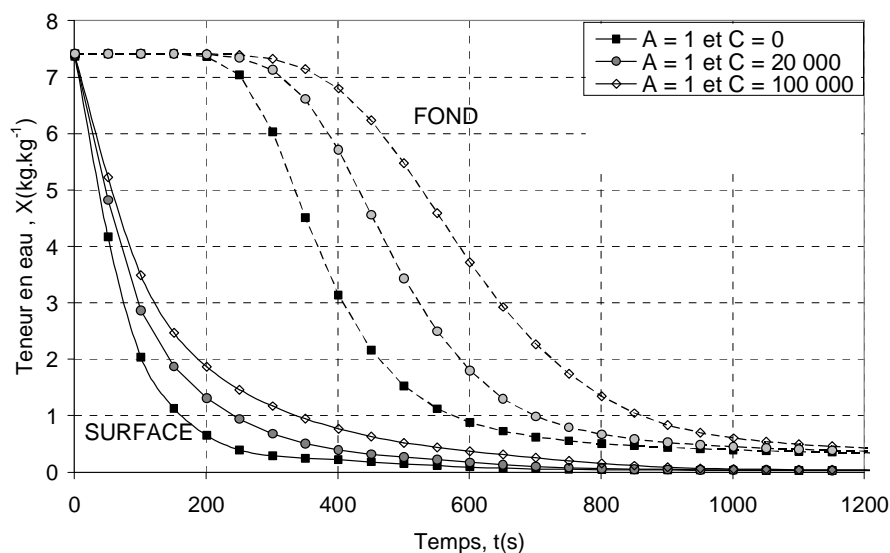


Figure 4-66 : Evolution des teneurs en eau en surface et au fond de la boîte en fonction du temps pour différentes pondérations

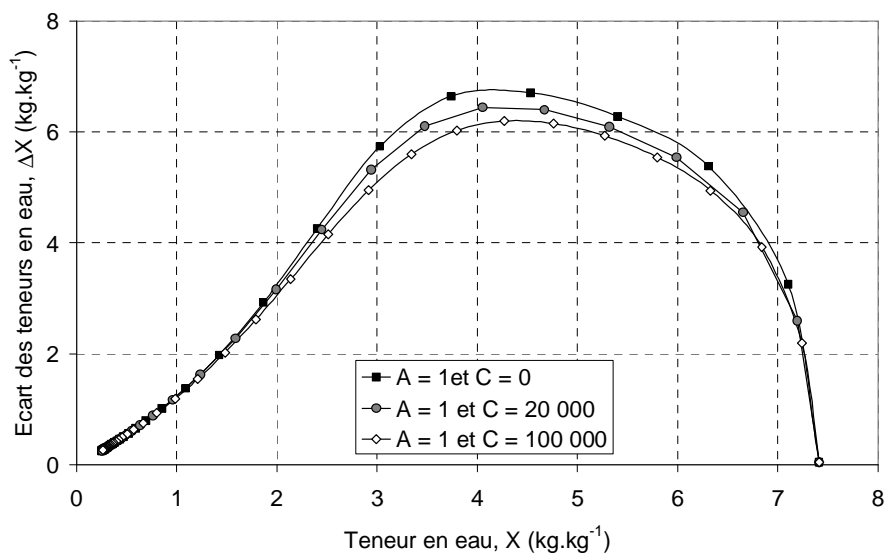


Figure 4-67 : Evolution de l'écart entre la teneur en eau en surface et au fond de la boîte en fonction de la teneur en eau moyenne pour différentes pondérations

	C	Temps de séchage (s) $X_f = 1 \text{ kg.kg}^{-1}$	Vitesse de séchage maximale en surface ($\text{kg.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$)
1	0	540	0,072
2	$2 \cdot 10^4$	642	0,056
3	10^5	797	0,045

Tableau 4-22 : Temps de séchage et vitesse de séchage maximale en surface pour différentes pondérations

La courbe des meilleurs compromis est représentée sur la Figure 4-68.

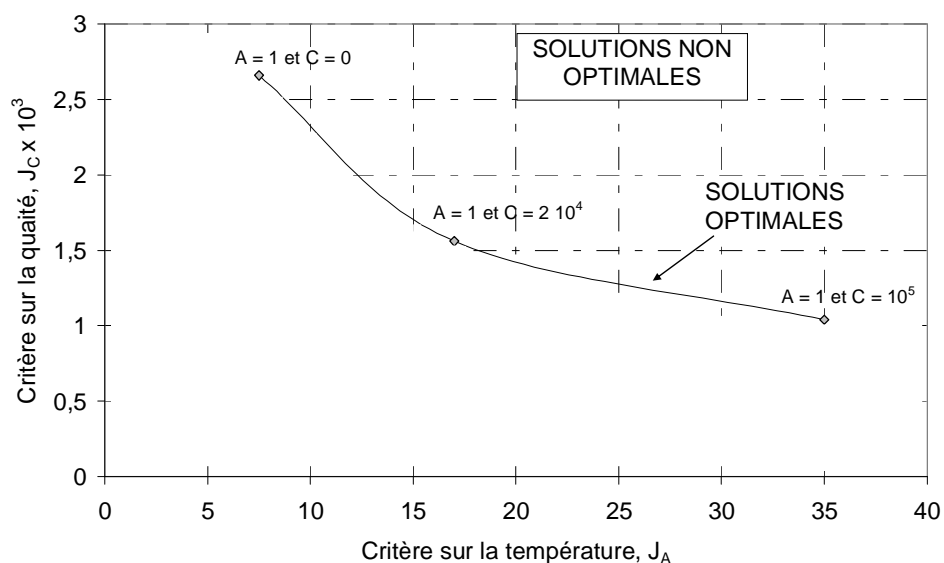


Figure 4-68 : Représentation des solutions optimales (fonction de Pareto)

La loi de commande obtenue pour ($A = 1$ et $C = 2 \times 10^4$) a été appliquée lors d'un essai expérimental afin de valider la démarche suivie. Comme pour l'essai en régulation, la température est supérieure à la température expérimentale en début de séchage (Figure 4-69). De même, l'évolution de la teneur en eau est influencée par les perturbations externes.

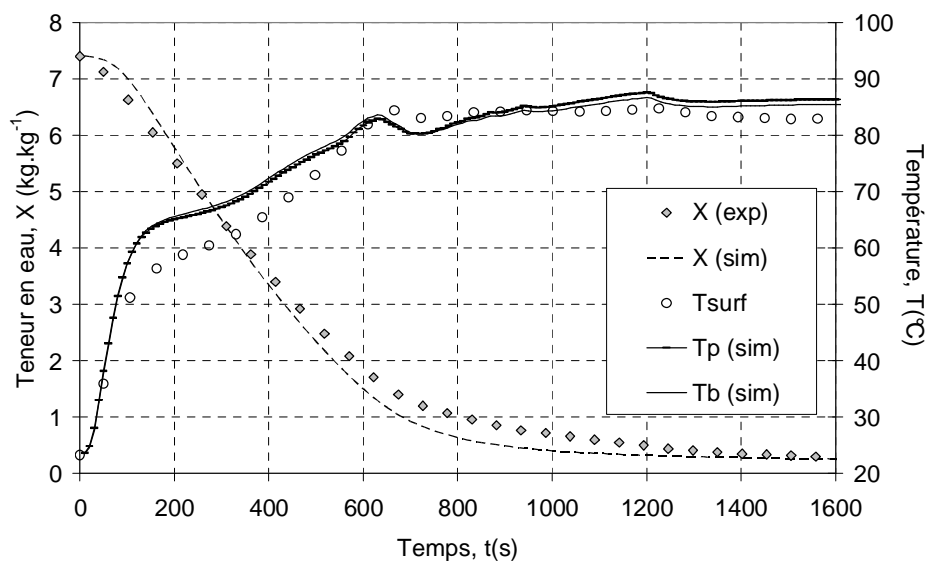


Figure 4-69 : Confrontation entre les réponses expérimentales et simulées avec la loi de commande obtenue pour $A = 1$ et $C = 2 \times 10^4$

Au cours de cet essai, la boîte ne s'est pas déformée. De plus, nous avons noté une formation limitée de stries en surface du produit. On rappelle que ce phénomène est lié à la teneur en eau superficielle. La teneur en eau finale du produit est proche de $0,2 \text{ kg.kg}^{-1}$ ce qui signifie que la quasi totalité de l'eau a pu être éliminée. Les stries

que nous avons observées lors des essais en infrarouge précédent (chapitre 2) sont très petites et n'ont pas bloqué la diffusion de matière au sein du mélange. De plus, la commande de ce procédé a permis de retarder leur apparition. En effet, elles sont apparues pour une teneur en eau moyenne de l'ordre de $0,77 \text{ kg.kg}^{-1}$. Dans l'ensemble des essais en infrarouge précédemment réalisés (chapitre 2 et essai en régulation), ce phénomène apparaissait pour une teneur en eau moyenne comprise entre 1 et 3 kg.kg^{-1} . Une mesure de la hauteur et de la dispersion des stries a été réalisée à l'aide d'un profilomètre. Les résultats présentés dans l'annexe AII montrent l'intérêt de la démarche entreprise pour améliorer l'état de surface.

4.2.3 Couplage consommation énergétique et qualité du produit final

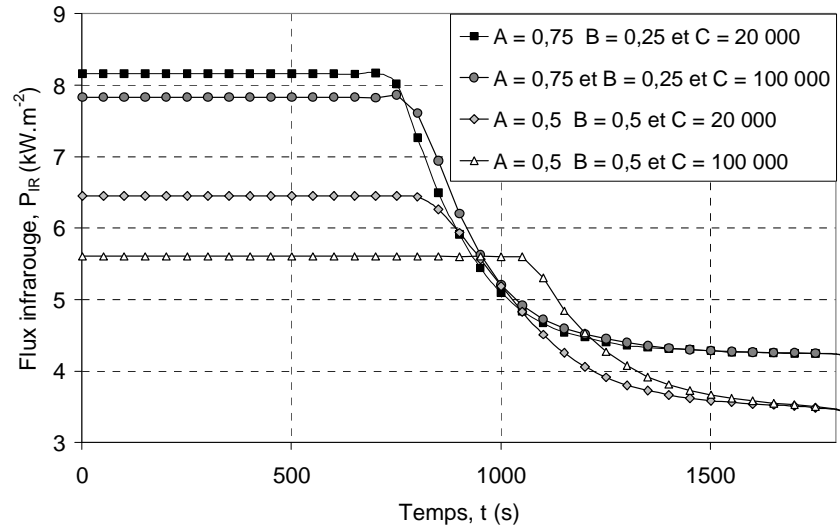
Le Tableau 4-23 montre l'incidence des coefficients de pondérations sur le temps de séchage, la consommation d'énergie et la vitesse de séchage superficielle.

	Temps de séchage (s) pour $X_f = 1 \text{ kg.kg}^{-1}$	Efficacité énergétique (kg.kWh^{-1})	Vitesse de séchage maximale en surface ($\text{kg.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$)
A = 0,75 / B = 0,25 / C = 20 000	800	0,56	0,045
A = 0,75 / B = 0,25 / C = 100 000	950	0,61	0,045
A = 0,5 / B = 0,5 / C = 20 000	820	0,55	0,044
A = 0,5 / B = 0,5 / C = 100 000	1050	0,63	0,043

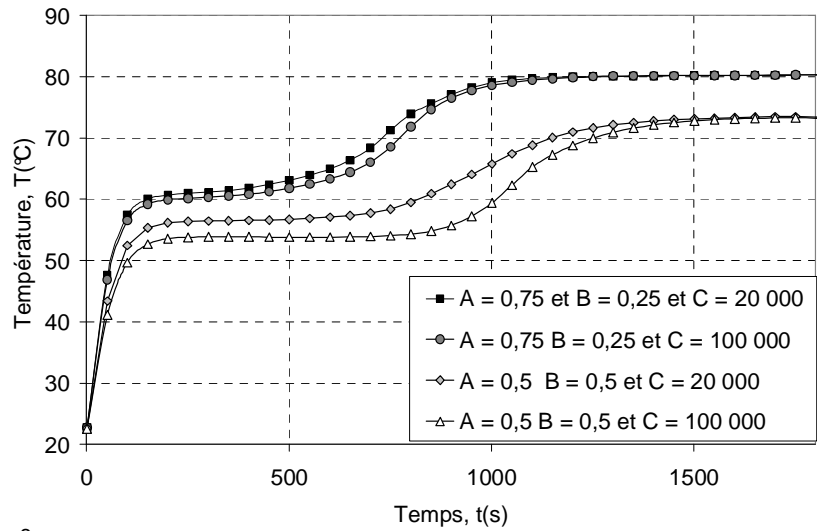
Tableau 4-23 : Confrontation des différents termes du critère.

Les courbes relatives à ces tests sont données sur les figures 4-14 a,b,c. La température finale du produit est essentiellement fonction de la consommation énergétique. Lorsque le critère sur le temps de séchage est prépondérant, les densités de flux infrarouge sont importantes. Le critère sur la teneur en eau superficielle a alors peu d'influence. En effet, la Figure 2-8 montre que pour $A = 0,75$, les évolutions de la teneur en eau de surface sont similaires pour les deux valeurs de C envisagées. A l'inverse, lorsque $A = 0,5$, la minimisation de la vitesse de séchage a plus d'influence sur la température et la teneur en eau moyenne. Ces différents essais montrent la difficulté lorsque la fonction objectif compte plus de deux termes, de trouver plusieurs essais représentatifs de l'ensemble des solutions de ce problème.

a)



b)



c)

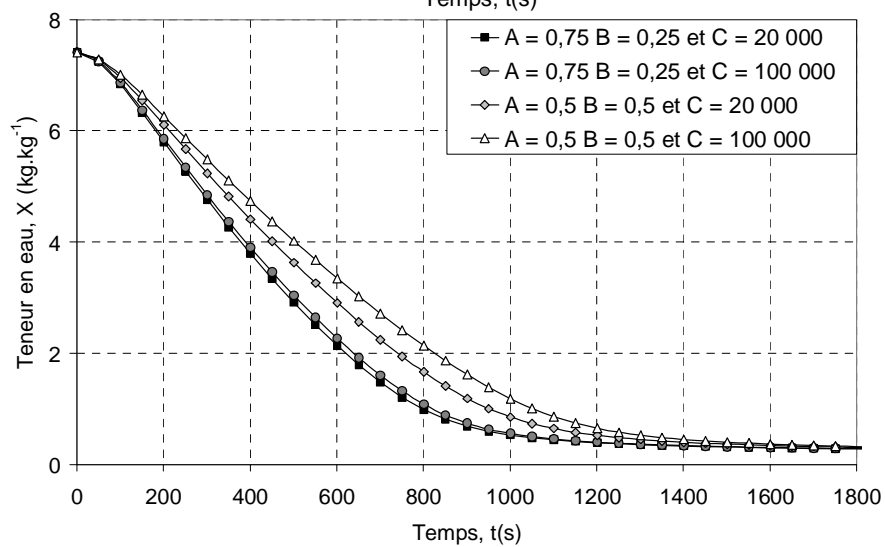


Figure 4-70 : a) Evolution des densités de flux infrarouge b) Evolution des températures c) Evolution des teneurs en eau en fonction du temps pour différents essais d'optimisation

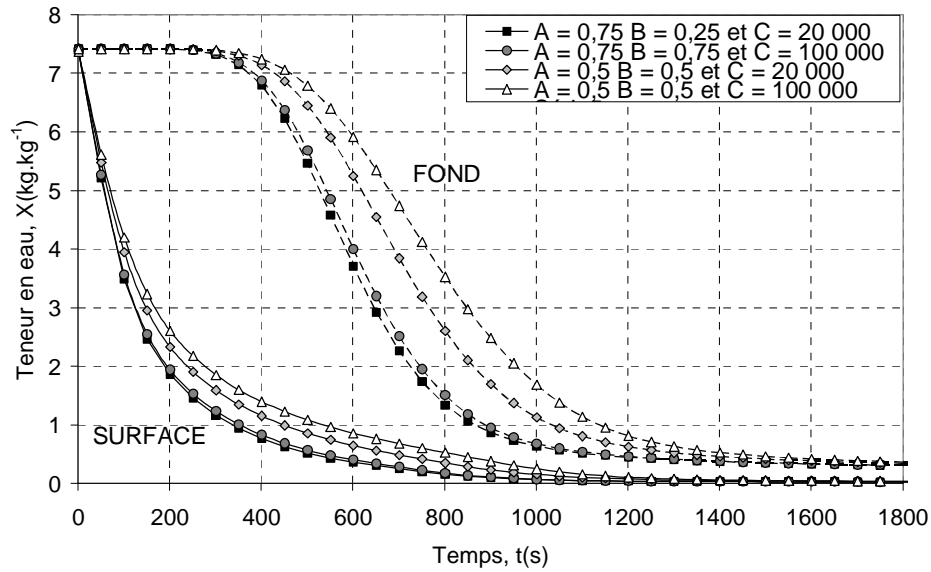


Figure 4-71 : Evolution des teneurs en eau en surface et au fond de la boîte en fonction du temps pour différentes pondérations.

4.3 Conclusion

La commande optimale se révèle un outil efficace permettant d'aboutir à un compromis entre plusieurs objectifs pouvant être contradictoires. Pour obtenir des résultats satisfaisants, les différentes pondérations doivent être bien choisies. Dans notre approche, le temps de séchage est minimisé en cherchant à maximiser la température. La minimisation de la consommation énergétique est aussi introduite. Pour améliorer la qualité finale du produit, nous proposons de limiter la vitesse de séchage en surface. Les résultats expérimentaux ont montré les possibilités et les limites de cette démarche. S'il est possible de diminuer le temps de séchage tout en n'ayant pas de déformation de la boîte, l'amélioration de la qualité finale du produit est d'autant plus difficile à obtenir qu'elle est difficile à traduire comme critère.

Les coefficients de pondérations introduits dans cette étude sont constants. On peut envisager de définir à la place une fonction poids et de faire évoluer ces critères en fonction du temps. On pourrait ainsi favoriser la vitesse d'évaporation en début de séchage et tenir compte d'un critère sur la qualité finale du produit uniquement lorsque le flux masse commence à chuter.

Enfin, l'étude a montré les limites d'une commande hors ligne. Une perspective intéressante sera de développer une commande en ligne de façon à prendre en compte les conditions réelles.

Conclusion

Les travaux présentés dans ce mémoire ont abouti au développement d'une méthodologie permettant de chercher les conditions optimales pour le séchage d'une solution aqueuse de polymère (l'alcool polyvinylique, PVA) contenant un plastifiant en combinant des apports par convection et par rayonnements de type infrarouge.

Une étude bibliographique du séchage des milieux fortement déformables s'est avérée nécessaire pour bien cerner toute la complexité des phénomènes qui interviennent dans ce processus. Les bases d'un modèle physique décrivant les transferts de masse et de chaleur ont pu être posées en montrant que l'un des paramètres clef de cette étude de séchage est le coefficient de diffusion mutuel du mélange.

A travers une démarche expérimentale, les principales propriétés du produit étudié ont été caractérisées et comparées à celles de solutions pures de PVA. Les résultats obtenus ont montré que le produit peut être assimilé à un milieu diphasique et d'autre part que le glycérol a une influence notoire sur les propriétés du produit, notamment sur l'activité. Des cinétiques de séchage ont été établies en convection pure et en combinant convection et infrarouge grâce à un pilote de séchage. Ces essais ont clairement mis en évidence l'influence des conditions aérauliques et de l'éclairement infrarouge sur les évolutions de la teneur en eau et de la réponse en température du matériau. La confrontation de différents essais a mis en avant l'efficacité en terme de temps de séchage d'un chauffage par rayonnement de courte longueur d'onde qui permet d'apporter de l'énergie au cœur du produit. Par contre, lorsque les sollicitations thermiques sont trop importantes, nous avons pu constater la formation en surface d'une peau qui se traduit par un frein à la migration de l'eau. Il s'avère alors nécessaire de bien quantifier l'impact de l'éclairement infrarouge sur le comportement thermique et hydrique du produit afin d'obtenir un produit de bonne qualité. Les essais en convection ont servi à l'identification du coefficient d'échange par convection, puis à estimer un coefficient de diffusion global en utilisant la solution analytique de l'équation de Fick. Le calcul approximatif de la température d'émission des émetteurs couplé à des mesures par spectromètre à transformée de Fourier ont permis d'estimer l'évolution des propriétés radiatives du produit au cours du séchage.

En parallèle à ces expérimentations, nous avons développé un code de calcul simulant les transferts de masse et de chaleur mis en jeu. Pour modéliser les transferts de masse dans le produit, nous avons exploité deux approches : l'une basée

sur le choix d'une vitesse de référence volumique et l'autre sur le choix d'une vitesse de référence barycentrique. Dans le premier cas, les difficultés liées à la modélisation et plus particulièrement au retrait de matière sont résolues en se ramenant à un repère fixe grâce à la transformée de Landau. Dans le deuxième cas, nous effectuons la résolution des équations dans un repère Lagrangien lié au produit sec.

Des essais de simulation ont montré que le gradient de température au sein du mélange est très faible, ce qui a été confirmé par l'étude expérimentale. Du fait de l'épaisseur initiale et de la forte teneur en eau, on obtient des gradients de fractions volumiques (ou de teneurs en eau) conséquents. Les deux approches (volumique et barycentrique) ont abouti à des résultats analogues aussi bien en convection qu'en infrarouge. Toutefois, une étude de la convergence et des temps de calcul a permis de mettre en avant l'intérêt de choisir une vitesse de référence barycentrique.

Ce modèle a été exploité pour estimer le coefficient de diffusion mutuel du mélange par une méthode inverse. L'expression retenue pour le coefficient de diffusion est une fonction exponentielle de la teneur en eau et une loi d'Arrhenius pour la température. Pour obtenir des résultats satisfaisants, la minimisation a été menée sous contraintes. Le modèle ainsi développé a alors été validé en convection et en infrarouge.

Pour optimiser le procédé de séchage, le modèle développé a été exploité afin de déterminer une commande hors ligne de l'éclairage infrarouge permettant de définir un compromis entre temps de séchage, consommation énergétique et qualité finale du produit tout en respectant des contraintes notamment sur la teneur en eau et la température. Cette loi de commande s'appuie sur la minimisation hors ligne d'une fonctionnelle prenant en compte différents critères liés aux objectifs à atteindre. Nous avons montré que des tests bien menés permettent d'obtenir une bonne approche des solutions optimales du problème. Le choix final du compromis est alors laissé à l'utilisateur.

Les différents résultats présentés ont par ailleurs montré la nécessité de poursuivre ces travaux dans deux directions contradictoires : apporter plus de connaissance au modèle et réduire les temps de calcul. En effet, le produit que nous avons étudié étant complexe, une première étape pour améliorer l'optimisation du procédé passera certainement par une caractérisation plus approfondie. Le comportement mécanique du produit n'a pas été abordé dans cette étude et pourrait peut être aider à mieux appréhender la qualité finale du produit et la formation de stries. L'évolution du taux de cristallinité a été évoqué mais devra certainement être introduite dans le modèle. Toutefois, un modèle plus complexe sera certainement plus coûteux en terme de temps de calcul, ce qui sera un inconvénient pour l'optimisation si l'on veut réaliser une commande en ligne des émetteurs infrarouges. L'étude menée a montré l'importance de prendre en compte les perturbations en temps réel. Un compromis devra donc être trouvé.

Références

- [1] C. Geipel, P. Stephan, *Experimental investigation of the drying process of automotive base paints*, Applied thermal engineering, Vol. 25, N°16, pp. 2578-2590 (2005).
- [2] V. Lamaison, Y. Scudeller, J.P. Bardon, F. Danes, S.W. Peng, J.P. Dory, *Etude expérimentale des phénomènes de transferts lors du séchage et de la cuisson de films de peinture sous rayonnement infrarouge*, International Journal of thermal science, Vol. 40, pp. 181-194 (2001).
- [3] V. Lamaison, *Etude expérimentale et numérique des phénomènes de transfert lors du séchage et de la cuisson de films de peinture sous rayonnement infrarouge*, Thèse de l'Ecole polytechnique de Nantes (2000).
- [4] D. Blanc, *Etude théorique et expérimentale du séchage et de la réticulation sous rayonnement infrarouge d'une peinture de type époxy-amine à base aqueuse sur support métallique*, Thèse de l'Université Claude Bernard Lyon 1 (1997).
- [5] S. Le Person, JR Puigalli, M. Baron, M. Roques, *Near infrared drying of pharmaceutical thin films : experimental analysis of internal mass transport*, Chemical engineering and processing, Vol. 37, pp. 257-263 (1998).
- [6] S. Le Person, *Séchage sélectif d'enductions pharmaceutiques.*, Thèse de l'Université de Pau et des pays de l'Adour (1996).
- [7] F. Zagrouba, *Séchage mixte par convection et un apport rayonnant micro-onde des milieux déformables. Modélisation des phénomènes de transferts de chaleur et de matière*, Institut National Polytechnique de Lorraine (1993).
- [8] E. Bogdanis, *Modélisation des transports de chaleur et de matière lors du séchage d'un milieu élastique ou viscoélastique. Résolution par des méthodes aux éléments finis*, Thèse de l'Université de Pau (2001).
- [9] J.P. Nadeau, J.R. Puigalli, *Séchage des processus physiques aux procédés industriels*, Technique et documentation - Lavoisier, Paris (1995).

- [10] M. Nishimura, M. Kuraishi, Y. Bando, *Effect of internal heating on infrared drying of coated films*, Heat transfer japanese research, Vol. 12, pp. 59-71 (1983).
- [11] B. Guerrier, C. Bouchard, C. Allain, C. Bénard, *Drying kinetics of polymers films*, AIChE Journal, Vol. 44, N°4, pp. 791-798 (1998).
- [12] M.Yoshida, H. Miyashita, *Drying behavior of polymer solution containing two volatile solvents.*, Chemical engineering Journal, Vol. 86, pp. 193-198 (2002).
- [13] M. Vinjamur, R. A. Cairncross, *Non-Fickian Nonisothermal model for drying of polymer coatings.*, AIChE Journal., Vol. 48, N° 11, pp. 2444-2458 (2002).
- [14] H. Lei, J.A. Payne, A.V. McCormick, L.F. Francis, W.W. Gerberich, L.E. Scriven, *Stress development in drying coatings.*, Journal of Applied Polymer Science, Vol. 81, pp. 1000-1013 (2001).
- [15] J.F. Sacadura, *Initiation aux transferts thermiques*, Technique et Documents, Lavoisier (1993).
- [16] P. Glouannec, D. Lecharpentier, H. Noel, *Experimental survey on the combination of radiating infrared and microwave sources for the drying of porous material.*, Applied Thermal Engineering, Vol. 22, pp.1689-1703 (2002).
- [17] A. Aavci, M. Can, A B Etemoglu, *A theoretical approach to the drying process of thin film layers*, Applied thermal engineering, Vol. 21, pp. 465-479 (2001).
- [18] P. Navarri, *Etude du séchage par rayonnement infrarouge – Application à un produit capillo-poreux et à une enduction.*, Thèse de l'Université Claude Bernard Lyon 1 (1992).
- [19] P. Navarri, J. Andrieu, *High-intensity infrared drying study. Part II. Case of thin coated films.*, Chemical Engineering and Processing, Vol. 32, pp. 319-325 (1993).
- [20] W. Aregba, W. Jomaa, J.R. Puigali, *Une approche du séchage de matériaux fortement déformables*, Revue Physique Appliquée, Vol. 25, N°11, pp. 1161-1175 (1990).
- [21] L.Perrin,Q. T. Nguyen, R. Clement, J. Nee1, *Sorption and Diffusion of Solvent Vapours in Poly(vinyl alcohol). Membranes of Different Crystallinity Degrees*, Polymer International, Vol. 39, pp. 251-260 (1996).
- [22] S.S. Wong, S.A. Altinkaya, S.K. Mallapragada, *Drying of semicrystalline polymers: mathematical modeling and experimental characterization of poly(vinyl alcohol). films*, Polymer, Vol. 45, pp. 5151-5161 (2004).

- [23] S. Basu, U.S. Shivhare, A.S Mujumdar, *Models for sorption isotherms for foods: A review*, Drying technology, Vol. 24, 917-930 (2006).
- [24] A. Chettaf, *Contribution à l'étude du séchage par rayonnement infrarouge : Application au séchage en couche mince d'une enduction.*, Thèse de l'Université de Valenciennes et du Hainaut Cambrésis (1994).
- [25] J. Mintzlaff, *Determination of properties for the calculation of aqueous thin film drying*, Heat and Mass transfer, Vol. 37, pp. 617-622 (2001).
- [26] A.C. Saby-Dubreuil, *Séchage de films polymères : Etude du couplage entre la diffusion et la transition vitreuse*, Application à des copolymères PMMA / PnBMA., Thèse de l'Université Paris VI (2001).
- [27] A.-C. Dubreuil, F. Doumenc, B. Guerrier, D. Johannsmann, C. Allain, *Analysis of the solvent diffusion in glassy polymer films using a set inversion method*, Polymer, Vol. 44, pp. 377-387 (2003).
- [28] M.E Katekawa, M.A Silva, *A review of drying models including shrinkage effects*, Drying technology, Vol. 24, pp. 5-20 (2006).
- [29] S.S. Wong, S.A. Altinkaya, S.K. mallagrapagada, *Understanding the effect of skin formation on the removal of solvents from semicrystalline polymers*, Journal of polymer science : Part B : Polymer Physics, Vol. 43, pp. 3191-3204 (2005).
- [30] P. Dufour, *Contribution à la commande prédictive des systèmes à paramètres répartis non linéaires*, Thèse de l'Université Claude Bernard-Lyon 1 (2000).
- [31] W. Jomaa, *Séchage de matériaux fortement déformables, Prise en compte de la vitesse de retrait*, Thèse de l'Université de Bordeaux I (1991).
- [32] W. Jomaa, J.R. Puiggali, *Drying of shrinking materials: Modelling with shrinkage velocity*, Drying technology, Vol. 9, N° 5, pp. 1271-1293 (1991).
- [33] J.S. Vrentas, M. Vrentas, *Drying of solvent-coated polymer films.*, Journal of polymer science : Part B : polymer physics, Vol. 32, pp. 187-194 (1994).
- [34] R.B. Bird, WE. Stewart, E.N Lightfoot, *Transport phenomena*, 2ème édition, John Wiley & Sons, Inc (2002).
- [35] Incropera, DeWitt, Bergman, Lavine, *Fundamentals of heat and mass transfers*, 6ème édition, John Wiley and Sons (2005).

- [36] M. Okazaki, K. Shioda, K. Masuda, R. Toei, *Drying mechanism of coated film of polymer solution.*, Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 7, N° 2, pp. 99-105 (1974).
- [37] C. Bouchard, *Séchage d'un vernis polymère : analyse globale du procédé industriel et description locale du film*, Thèse soutenue à l'Université Paris VI (1997).
- [38] J.S. Ventras, C.M. Ventras, *Predictive methods for self-diffusion and mutual diffusion coefficients in Polymer / Solvent systems.*, Eur. Polym. Journal, Vol. 34, pp. 797-803 (1998).
- [39] B.E. Poling, J.M. Prausnitz, J.P. O'connell, *The properties of gases and liquids*, 5ème édition., Mc Graw-Hill (2001).
- [40] J.S. Vrentas, C.M. Vrentas, *Surface concentration effects in the drying of solvent-coated polymer films.*, Journal of Applied Polymer Science, Vol. 60, pp.1049-1055 (1996).
- [41] H.P. Blandin, J.C. David, J.M. Vergnaud, *Modelling of drying of coatings : effect of the tickness, temperature and concentration of solvent.*, Progress in organic coating, Vol. 15, pp. 163-172 (1987).
- [42] J.A. Hernandez, G. Pavon, M.A. Garcia, *Analytical solution of mass transfer equation considering shrinkage for modeling food-drying kinetics.*, Journal of food engineering, Vol. 45, pp.1-10 (2000).
- [43] I. Livian, J.M. Vergnaud, *Process of drying a polymeric paint by diffusion-evaporation and shrinkage, Determination of the concentration-dependent diffusivity*, Polymer Testing, Vol. 14, pp. 479-487 (1995).
- [44] I. Mamaliga, W. Schabel, M. Kind, *Measurements of sorption isotherms and diffusion coefficients by means of a magnetic suspension balance.*, Chemical engineering and processing, pp. 1-12 (2003).
- [45] S. Azzouz, A. Guizani, W. Jomaa, A. Belghith, *Moisture diffusivity and drying kinetic equation of convective drying of grapes*, Journal of food engineering, Vol. 55, pp. 323-330 (2002).
- [46] I.I. Ruiz-Lopez, M.A. Garcia-Alvarado, *Analytical solution for food-drying kinetics considering shrinkage and variable diffusivity*, Journal of food engineering, Vol. 79, N°1, pp. 208-216 (2006).

- [47] N. Kechaou, *Séchage de gels déformables : Etude de la diffusion interne de l'eau et modélisation*, Thèse de l'INPL (1989).
- [48] I. Bialobrzewski, M. Markowski, *Mass transfer in the celery slice: Effects of temperature, moisture content, and density on water diffusivity*, Drying technology, Vol. 22, N°7, PP. 1777-1789 (2004).
- [49] B. Hadrich, N. Kechaou, *Mathematical modelling and simulation fo heat and mass transfer phenomena in a shrinking cylinder during drying*, Proceedings of the 14th International drying symposium, Sao Paulo, Brazil, 22-25 August 2004, Vol A, pp. 533-541 (2004).
- [50] M. Raderer, A. Besson, K. Sommer, *A thin film approach for the determination of water diffusion coefficients in viscous products*, Chemical engineering journal, Vol. 86, pp. 185-191 (2002).
- [51] K. Levenberg *A Method for the Solution of Certain Problems in Least Squares*. Quart. Appl. Math., Vol. 2, pp. 164-168 (1944).
- [52] D. Marquardt, *An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters*. SIAM J. Appl. Math. 11: 431-441 (1963).
- [53] F. Doumenc, B. Guerrier, *Estimating Polymer / Solvent diffusion coefficient by optimization procedure*, AIChE Journal, Vol. 47, N° 5, pp. 984-993 (2001).
- [54] P. Dufour, *Control engineering in drying technology: Review and trends*, Drying technology, Vol. 24, pp. 889-904 (2006).
- [55] P. Borne, F. Rotella, *Commande optimale*, Techniques de l'ingénieur, R 7427.
- [56] X. François, *Identification et commande d'une installation aquacole en circuit fermé : optimisation énergétique*, Thèse de l'Université de Bretagne Occidentale (1999).
- [57] Bergounioux M., *Optimisation et contrôle des systèmes linéaires*, Dunod, Paris (2001).
- [58] J.R. Banga, E. Balsa-Canto, C. G. Moles, A.A. Alonso, *Improving food processing using modern optimization methods*, Trends in food science and technology, Vol. 14, pp. 131-144 (2003).

- [59] I.C. Trelea, G. Trystram, F. Courtois, *Optimal constrained non-linear control of batch processes: Application to corn drying*, Journal of Food engineering, Vol. 31, pp. 403-421 (1997).
- [60] W. Kaminski, C. Strumillo, *Optimal control of bioproduct drying with respect product quality*, Chemical engineering and processing, Vol. 31, 125-129 (1992).
- [61] J.C. Ho, S.K. Chou, A.S. Mujumdar, M.N.A. Hawlader, K.J. Chua, *An optimisation framework for drying of heat-sensitive products.*, Applied thermal engineering, Vol. 21, pp. 1779-1798 (2001).
- [62] M.C. Larabi, P.Dufour, P.Laurent, Y.Toure, *Predictive control of nonlinear distributed parameter system : real time control of a painting film drying process.*, Mathematical theory of Networks and systems, Conférence Perpignan (2000).
- [63] P.E. Price, J.R. Richard A. Cairncross, *Optimization of single-zone drying of polymer solution coatings using mathematical modeling*, Journal of Applied Polymer Science, Vol. 78, pp. 149-165 (2000).
- [64] D.D. Deppe, R.D. Miller, J.M. Torkelson, *Small molecule diffusion in a rubbery polymer near T_g : Effects of probe size, shape, and flexibility*, Journal of polymer science : Part B : Polymer Physics, Vol. 34, pp. 2987-2997 (1996).
- [65] J. Rault, R. Gref, Z.H. Ping, Q.T. Nguyen, J. Néel, *Glass transition temperature regulation effect in a poly(vinyl alcohol).-water system*, Polymer, Vol. 36, pp. 1655-1661 (1995).
- [66] Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, John Wiley and Sons, 2ème édition, Vol. 17, 167 (1985).
- [67] MatWeb, *Material property Data*, <http://www.matweb.com>.
- [68] R. Wang, Q. Wang, L. Li, *Evaporation behaviour of water and its plasticizing effect in modified poly(vinyl alcohol). systems*, Polymer international, Vol. 52, pp. 1820-1826 (2003).
- [69] Q.L. Liu, H.Q. Gao, *Prediction of mutual-diffusion coefficients in polymer solutions using a simple activity model*, Journal of membrane science, 214, 131-142 (2003).
- [70] M. Celere, C. Gostoli, *Osmotic distillation with propylene glycol, glycerol-salt mixtures*, Journal of membrane science, Vol. 229, pp. 159-170 (2004).

- [71] M.O. Ngui, S.K. Mallapragada, *Mechanistic investigation of drying regimes during solvent removal from poly(vinyl alcohol). films*, Journal of applied polymer science, Vol. 72, pp. 1913-1920 (1999).
- [72] M.O. Ngui, S.K. Mallapragada, *Quantitative analysis of crystallization and skin formation during isothermal solvent removal from semicrystalline polymers*, Polymer, Vol. 40, pp. 5393-5400 (1999).
- [73] M.O. Ngui, S.K. Mallapragada, *Understanding isothermal semicrystalline polymer drying: Mathematical models and experimental characterization*, Journal of polymer science: Part B: Polymer physics, Vol. 36, pp. 2771-2780 (1998).
- [74] D. Le Charpentier, *Optimisation d'un procédé de séchage, Problématiques liées au transfert de masse et de chaleur lors de l'utilisation de technologies rayonnantes micro-onde et infrarouge*, Thèse de l'Université de Nantes (2000).
- [75] G. Wypych, *Handbook of plasticizers*. Chem Tec publishing, William Andrew Publishing, Toronto, New York (2004).
- [76] S.Rajendran, M.Sivakumar, R Subadevi, *Effect of plasticizers in PVA-Based hybrid solid polymer electrolytes.*, Journal of Applied Polymer Science, Vol. 90, pp. 2794-2800 (2003).
- [77] E. Ciampi, P. J.McDonald, *Skin formation and water distribution in semicrystalline polymer layers cast from solution: a magnetic resonance imaging study*, Macromolecules, Vol. 36, pp. 8398-8405, (2003).
- [78] D. W. Breiby, E. J. Samuelsen, O. Konovalov, *The drying behaviour of conjugated polymer solutions*, *Synthetic Metals*, Vol. 139, pp. 361-369 (2003).
- [79] M.A. Ruiz-Cabrera, L. Foucat, J.M. Bonny, J.P. Renou, J.D. Daudin, *Assessment of water diffusivity in gelatine gel from moisture profiles. II. Data processing adapted to material shrinkage*, Journal of food engineering, Vol. 68, N°2, pp. 221-231 (2005).
- [80] B.Carnahan, *Applied numerical methods*. In: Luther HA, Wilkes JO, Robert E. Krieger publishing company Malabar, Florida (1990).
- [81] G. H. Kanevce, L. P. Kanevce, G. S. Dulikravich, H. R. B. Orlande, *Estimation of thermophysical properties of moist materials under different drying conditions.*, 4th Int. Conference on Inverse Problems in Engineering, Rio de janeiro, Brésil (2002).
- [82] F. Albouchi, M. Fetoui, F. Rigollet, M. Sassi, S.B. Nasrallah, *Optimal design and measurement of the effective thermal conductivity of a powder using a crenel heating excitation*, International journal of thermal sciences, Vol. 44, pp. 1090-1097 (2005).

[83] B. Remy, A. Degiovanni, *Parameters estimation and measurement of thermophysical properties of liquids*, International journal of heat and mass transfer, Vol. 48, pp. 4103-4120 (2005).

[84] Y. Collette, P. Siarry, *Optimisation multiobjectif*, Eyrolles, Paris (2002).

Annexe I

Discrétisation des équations

Sur chaque volume, l'intégration spatiale de l'équation de Fick et de l'équation de la chaleur donne lieu à un système de deux équations discrétisées sous la forme :

$$\dot{Y}_i = \alpha_i Y_{i-1} + \beta_i Y_i + \gamma_i Y_{i+1} + \delta_i$$

où α_i , β_i et γ_i et δ_i sont des coefficients où i représente les numéros des noeuds.

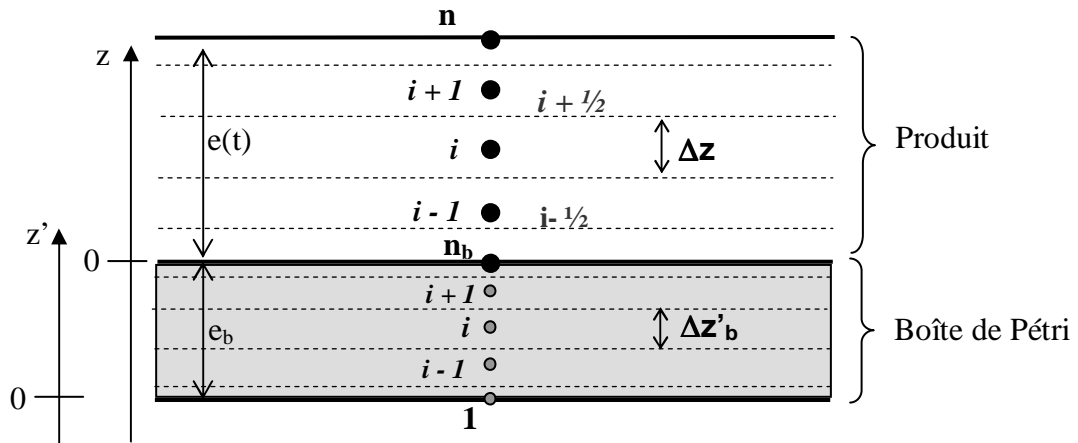


Figure AI-1 : Discrétisation spatiale

Le système s'écrit alors sous la forme matricielle suivante :

$$[\dot{Y}] = [A][Y] + [B]$$

où A est une matrice tridiagonale composée des termes α_i , β_i , γ_i , B un vecteur regroupant les sollicitations δ_i et Y , le vecteur des champs de teneur en eau et de température à déterminer.

$$Y = \begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ \vdots \\ T_n \\ X_{nb} \\ X_{nb+1} \\ \vdots \\ X_n \end{bmatrix} \quad A = \begin{bmatrix} \beta_1^t & \gamma & & & & & & \\ \alpha_2^t & \beta_2^t & \gamma_2^t & & & & & \\ & \ddots & \ddots & \ddots & & & & \\ & & \alpha_n^t & \beta_n^t & \gamma_n^t & & & \\ & & & \alpha_{nb}^m & \beta_{nb}^m & \gamma_{nb}^m & & \\ & & & & \alpha_{nb+1}^m & \beta_{nb+1}^m & \gamma_{nb+1}^m & \\ & & & & & \ddots & \ddots & \\ & & & & & & \alpha_n^m & \beta_n^m \end{bmatrix} \quad B = \begin{bmatrix} \delta_1^t \\ \delta_2^t \\ \vdots \\ \delta_n^t \\ \delta_{nb}^m \\ \delta_{nb+1}^m \\ \vdots \\ \delta_n^m \end{bmatrix}$$

L'écriture des coefficients α_i , β_i , γ_i et δ_i est détaillée dans cette annexe pour l'approche volumique en considérant un gradient de température au sein du produit et pour l'approche barycentrique en prenant une température de produit homogène.

AI.1 Choix d'une vitesse de référence volumique

AI.1.1 Discrétisation de l'équation des transferts de masse

Les termes α_i , β_i , γ_i et δ_i liés à l'équation des transferts de masse sont donnés par les relations suivantes :

- **au sein du produit** (domaine $0 < \xi < 1$, nœuds intérieurs $[n_b+1, n-1]$)

$$\begin{aligned} \alpha_i^m &= -\left(\frac{D}{e^2}\right)_e \frac{1}{(\xi_{i+1} - \xi_i)} - \left(\frac{D}{e^2}\right)_w \frac{1}{(\xi_i - \xi_{i-1})} \\ \beta_i^m &= \left(\frac{D}{e^2}\right)_w \frac{1}{(\xi_i - \xi_{i-1})} + \left(\frac{\xi_i F_m}{e \rho_A^0}\right)_i \frac{\Delta \xi_i}{(\xi_{i+1} - \xi_{i-1})} \quad \text{où } \Delta \xi_i = \frac{1}{2}(\xi_i - \xi_{i-1}) + \frac{1}{2}(\xi_{i+1} - \xi_i) \\ \gamma_i^m &= \left(\frac{D}{e^2}\right)_e \frac{1}{(\xi_{i+1} - \xi_i)} - \left(\frac{\xi_i F_m}{e \rho_A^0}\right)_i \frac{\Delta \xi_i}{(\xi_{i+1} - \xi_{i-1})} \end{aligned}$$

- à l'interface produit-boîte ($\xi = 0$, nœud n_b)

$$\begin{aligned} \alpha_{nb}^m &= -\left(\frac{D}{e^2}\right)_e \frac{1}{(\xi_{nb+1} - \xi_{nb})} \\ \gamma_{nb}^m &= \left(\frac{D}{e^2}\right)_e \frac{1}{(\xi_{nb+1} - \xi_{nb})} \quad \text{où } \Delta \xi_{nb} = \frac{1}{2}(\xi_{nb+1} - \xi_{nb}) \end{aligned}$$

- à l'interface air-produit ($\xi = 1$, nœud n)

$$\begin{aligned}\alpha_n^m &= -\left(\frac{D}{e^2}\right)_w \frac{1}{(\xi_n - \xi_{n-1})} + \left(\frac{F_m}{e\rho_A^0}\right) - \frac{\Delta\xi_n}{D_n} \left(\frac{F_m}{\rho_A^0}\right)^2 \\ \beta_n^m &= \left(\frac{D}{e^2}\right)_w \frac{1}{(\xi_n - \xi_{n-1})} \\ \delta_n^m &= -\left(\frac{F_m}{e\rho_A^0}\right) + \frac{\Delta\xi_n}{D_n} \left(\frac{F_m}{\rho_A^0}\right)^2\end{aligned}\quad \text{où} \quad \Delta\xi_n = \frac{1}{2}(\xi_n - \xi_{n-1})$$

AI.1.2 Discrétisation de l'équation de transferts de chaleur

Les termes $\alpha_i^t, \beta_i^t, \gamma_i^t$ et δ_i^t liés à l'équation de la chaleur s'écrivent :

$$\alpha_i^t = \frac{a_i^t}{K_i} \quad ; \quad \beta_i^t = \frac{b_i^t}{K_i} \quad ; \quad \gamma_i^t = \frac{c_i^t}{K_i} \quad \text{et} \quad \delta_i^t = \frac{c_i^t}{K_i}$$

où K_i est défini par domaine :

$$\begin{aligned}K_i &= (\rho C_p)_i \Delta\xi_i \quad \text{pour } i \in [n_b + 1, n] \quad (\text{Au sein du produit}) \\ K_{nb} &= (\rho C_p)_l \Delta\xi_l + (\rho C_{pb}) \frac{\Delta z'_{nb}}{e} \quad (\text{A l'interface boîte - produit}) \\ \text{où } \Delta z'_{nb} &= \frac{1}{2}(z'_{nb} - z'_{nb-1})\end{aligned}$$

Les coefficients a_i^t, b_i^t, c_i^t et d_i^t s'expriment par :

- **au sein du produit** (domaine $0 < \xi < 1$, nœuds intérieurs $[n_b + 1, n-1]$)

$$\begin{aligned}a_i^t &= -\left(\frac{\lambda}{e^2}\right)_e \frac{1}{(\xi_{i+1} - \xi_i)} + \left(\frac{D}{e^2}\right)_e C_{PAB,i} \frac{f_{A,i+1} - f_{A,i}}{(\xi_{i+1} - \xi_i)} \\ b_i^t &= \left(\frac{\lambda}{e^2}\right)_w \frac{1}{(\xi_i - \xi_{i-1})} + (\rho C_p)_i \frac{F_m \xi_i}{e\rho_A^0} \frac{\Delta\xi_i}{(\xi_{i+1} - \xi_{i-1})} - \left(\frac{D}{e^2}\right)_w C_{PAB,i-1} \frac{f_{A,i} - f_{A,i-1}}{(\xi_i - \xi_{i-1})} \\ c_i^t &= \left(\frac{\lambda}{e^2}\right)_e \frac{1}{(\xi_{i+1} - \xi_i)} - (\rho C_p)_i \frac{F_m \xi_i}{e\rho_A^0} \frac{\Delta\xi_i}{(\xi_{i+1} - \xi_{i-1})} \\ d_i^t &= \phi_{IR} \Delta\xi_i\end{aligned}$$

$$\text{où } C_{pAB} = C_{pA} \rho_A^0 + C_{pB} \rho_B^0$$

- à l'interface produit - boîte ($\xi = 0$, nœud n_b)

$$\begin{aligned}
 a_{nb}^t &= -\left(\frac{\lambda}{e^2}\right)_e \frac{I}{(\xi_{nb+1} - \xi_{nb})} - \frac{\lambda_b}{e(\xi_{nb} - \xi_{nb-1})} + \left(\frac{D}{e^2}\right)_e C_{pAB,nb} \frac{f_{A,nb+1} - f_{A,nb}}{(\xi_{nb+1} - \xi_{nb})} \\
 b_{nb}^t &= \frac{\lambda_b}{e(\xi_{nb} - \xi_{nb-1})} \\
 c_{nb}^t &= \left(\frac{\lambda}{e^2}\right)_e \frac{I}{(\xi_{nb} - \xi_{nb-1})} \\
 d_{nb}^t &= \phi_{IR} \Delta \xi_{nb}
 \end{aligned}$$

- à l'interface air-produit ($\xi = 1$, nœud n)

$$\begin{aligned}
 a_n^t &= -\left(\frac{\lambda}{e^2}\right)_w \frac{I}{(\xi_n - \xi_{n-1})} - \frac{h_{cp}}{e} + \left(\frac{\rho C_p}{\lambda}\right)_n \frac{F_m \Delta \xi_n}{\rho_A^0} h_{cp} \\
 b_n^t &= \left(\frac{\lambda}{e^2}\right)_w \frac{I}{(\xi_n - \xi_{n-1})} - \left(\frac{D}{e^2}\right)_w C_{pAB,n-1} \frac{f_{A,n} - f_{A,n-1}}{(\xi_n - \xi_{n-1})} \\
 c_n^t &= \phi_{IR} \Delta \xi_n + \left(\frac{\rho C_p}{\lambda}\right)_n \frac{F_m \Delta \xi_n}{\rho_A^0} \left[-h_{cp} T_{air} + F_m L_v + \sigma \varepsilon (T_n^4 - T_{enc}^4) \right] + \frac{I}{e} \left[h_{cp} T_{air} - F_m L_v - \sigma \varepsilon (T_n^4 - T_{enc}^4) \right]
 \end{aligned}$$

AI.2 Choix d'une vitesse de référence barycentrique

AI.2.1 Discrétisation de l'équation des transferts de masse

Les termes α_i , β_i , γ_i et δ_i liés à l'équation des transferts de masse s'écrivent :

- **au sein du produit** (domaine $0 < \xi < e_s$, nœuds intérieurs $[n_b+1, n-1]$)

$$\begin{aligned}
 \alpha_i^m &= -\left(\frac{D}{(1+\psi X)^2}\right)_e \frac{I}{(\xi_{i+1} - \xi_i)} - \left(\frac{D}{(1+\psi X)^2}\right)_w \frac{I}{(\xi_i - \xi_{i-1})} \\
 \beta_i^m &= \left(\frac{D}{(1+\psi X)^2}\right)_w \frac{I}{(\xi_i - \xi_{i-1})} \\
 \gamma_i^m &= \left(\frac{D}{(1+\psi X)^2}\right)_e \frac{I}{(\xi_{i+1} - \xi_i)}
 \end{aligned}$$

- à l'interface produit-boîte ($\zeta = 0$, nœud n_b)

$$\alpha_{nb}^m = - \left(\frac{D}{(1 + \psi X)^2} \right)_e \frac{I}{(\zeta_{nb+1} - \zeta_{nb})}$$

$$\gamma_{nb}^m = \left(\frac{D}{(1 + \psi X)^2} \right)_e \frac{I}{(\zeta_{nb+1} - \zeta_{nb})}$$

- à l'interface air-produit ($\zeta = e_s$, nœud n)

$$\alpha_n^m = - \left(\frac{D}{(1 + \psi X)^2} \right)_w \frac{I}{(\xi_n - \xi_{n-1})}$$

$$\beta_n^m = \left(\frac{D}{(1 + \psi X)^2} \right)_w \frac{I}{(\xi_n - \xi_{n-1})}$$

$$\delta_n^m = - \left(\frac{F_m}{\rho_B^0} \right)$$

AI.2.2 Discrétisation de l'équation de transferts de chaleur

Les termes $\alpha_i^t, \beta_i^t, \gamma_i^t$ et δ_i^t liés à l'équation de la chaleur au sein du produit dont la température est ici considérée comme homogène s'écrivent :

$$\alpha_{nb}^t = \frac{a_{nb}^t}{K_{nb}} \quad ; \quad \beta_i^t = \frac{b_{nb}^t}{K_{nb}} \quad ; \quad \gamma_i^t = \frac{c_{nb}^t}{K_{nb}} \quad \text{et} \quad \delta_i^t = \frac{c_{nb}^t}{K_{nb}}$$

$$\text{où } K_{nb} = \rho C_p e + (\rho C_{pb})_{nb} \Delta z'_{nb}$$

$$\text{et} \quad \left\{ \begin{array}{l} a_{nb}^t = - \frac{\lambda_b}{(\zeta_{nb} - \zeta_{nb-1})} - h_{cp} \\ b_{nb}^t = \frac{\lambda_b}{(\zeta_{nb} - \zeta_{nb-1})} \\ c_{nb}^t = \phi_{IR} (e + \Delta z'_{nb}) + h_{cp} T_{air} - F_m L_v - \sigma \epsilon (T_{nb}^4 - T_{enc}^4) \end{array} \right.$$

AI.3 Discrétisation de l'équation de la chaleur pour la boîte

Les termes $\alpha_i^t, \beta_i^t, \gamma_i^t$ et δ_i^t liés à l'équation de la chaleur s'écrivent :

$$\alpha_i^t = \frac{a_i^t}{K_i} \quad ; \quad \beta_i^t = \frac{b_i^t}{K_i} \quad ; \quad \gamma_i^t = \frac{c_i^t}{K_i} \quad \text{et} \quad \delta_i^t = \frac{d_i^t}{K_i}$$

où K_i est défini par domaine :

$$K_i = (\rho C_{pb})_i \Delta z'_i \quad \text{pour } i \in [1, n_b - 1] \quad \text{où} \quad \Delta z'_i = \frac{I}{2}(z'_i - z'_{i-1}) + \frac{I}{2}(z'_{i+1} - z'_i)$$

Les coefficients a_i^t, b_i^t, c_i^t et d_i^t sont donnés par :

- **au sein de la boîte** (domaine $0 < z' < e_s$, nœuds intérieurs $[1, n_b - 1]$)

$$\begin{aligned} \text{nœuds intérieurs } [1, n_b - 2] & \quad \left\{ \begin{aligned} a_i^t &= -\frac{\lambda_b}{(z'_{i+1} - z'_i)} - \frac{\lambda_b}{(z'_i - z'_{i-1})} \\ b_i^t &= \frac{\lambda_b}{(z'_{i+1} - z'_i)} \\ c_i^t &= \frac{\lambda_b}{(z'_i - z'_{i-1})} \\ d_i^t &= \phi_{IR} \Delta z'_i \end{aligned} \right. \\ \text{nœud intérieur } n_b - 1 & \quad \left\{ \begin{aligned} a_{nb-1}^t &= -\frac{\lambda_b}{(z'_{nb} - z'_{nb-1})} - \frac{\lambda_b}{(z'_{nb-1} - z'_{nb-2})} \\ b_{nb-1}^t &= \frac{\lambda_b}{(z'_{nb} - z'_{nb-1})} \\ d_{nb-1}^t &= \phi_{IR} \Delta z'_{nb} + \frac{\lambda_b T_{nb-1}}{(z'_{nb} - z'_{nb-1})} \end{aligned} \right. \end{aligned}$$

- **à l'interface air-boîte** ($z' = 0$, nœud 1) par :

$$\begin{aligned} a_1^t &= -\frac{\lambda_b}{(z'_2 - z'_1)} - h_{cb} \\ b_1^t &= \frac{\lambda_b}{(z'_2 - z'_1)} \\ c_1^t &= \phi_{IR} \Delta z'_1 + h_{cb} T_{air} + \sigma \varepsilon (T_{enc}^4 - T_1^4) \end{aligned}$$

Annexe II

Etat de surface du produit final

A l'aide d'un profilomètre, disposant d'un palpeur mécanique, les profils de plusieurs échantillons de produits secs ont été mesurés et sont donnés sur la Figure AII - 1. Le produit déché en 24h correspond à un séchage très lent réalisé à température ambiante. Les résultats obtenus montrent que la hauteur maximale et la dispersion des stries sont fonction des sollicitations thermiques.

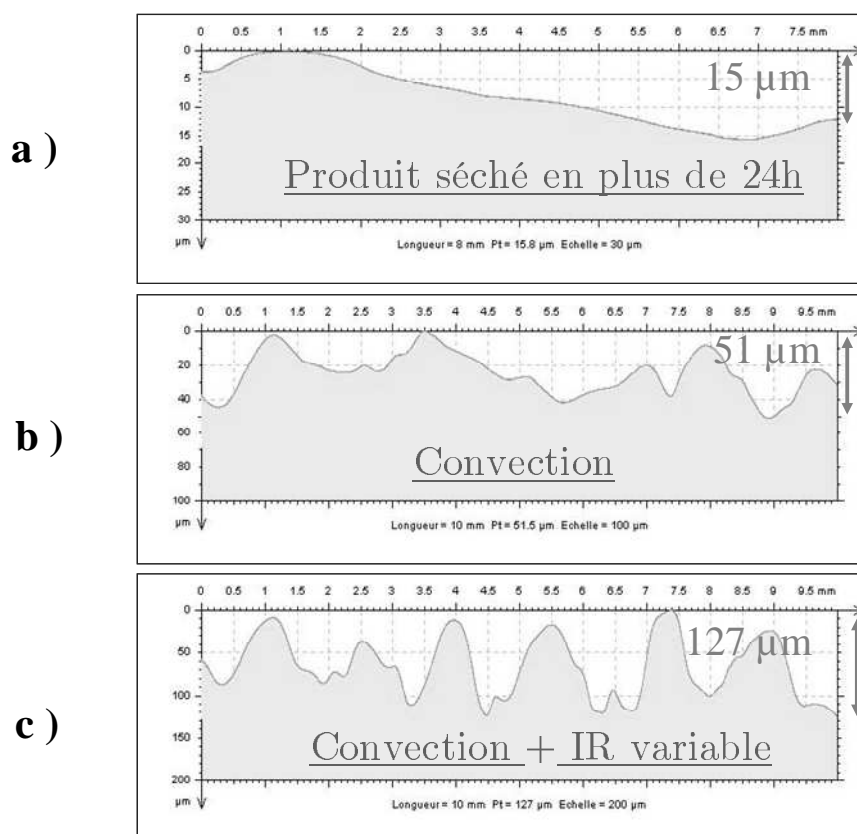


Figure AII - 1: Evolution des teneurs en eau en surface et au fond

Une observation au Microscope Electronique à Balayage de l'échantillon soumis à de fortes densités de flux infrarouge (Fig. AII-1c) est donnée sur la Figure

AII-2. On peut constater que la surface est particulièrement asséchée sur une épaisseur d'environ 5 μm .

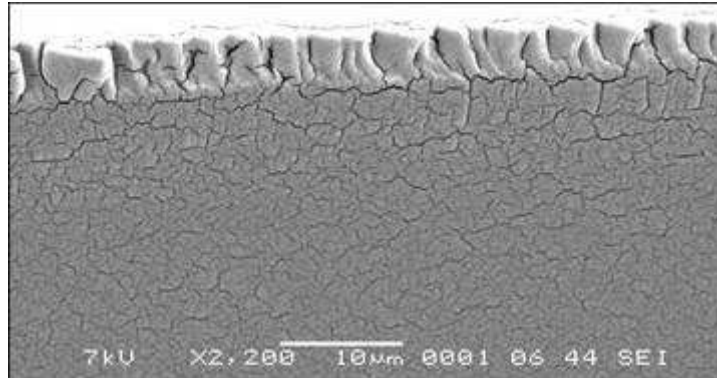


Figure AII – 2 : Evolution des teneurs en eau en surface et au fond

Au final, la figure AII – 3 montre qu'en comparaison avec cet essai, en optimisant la densité de flux infrarouge, le temps de séchage a non seulement été diminué

(11 min au lieu de 15 min) mais l'assèchement superficiel a été limité. En effet, les stries sont plus petites et plus fines.

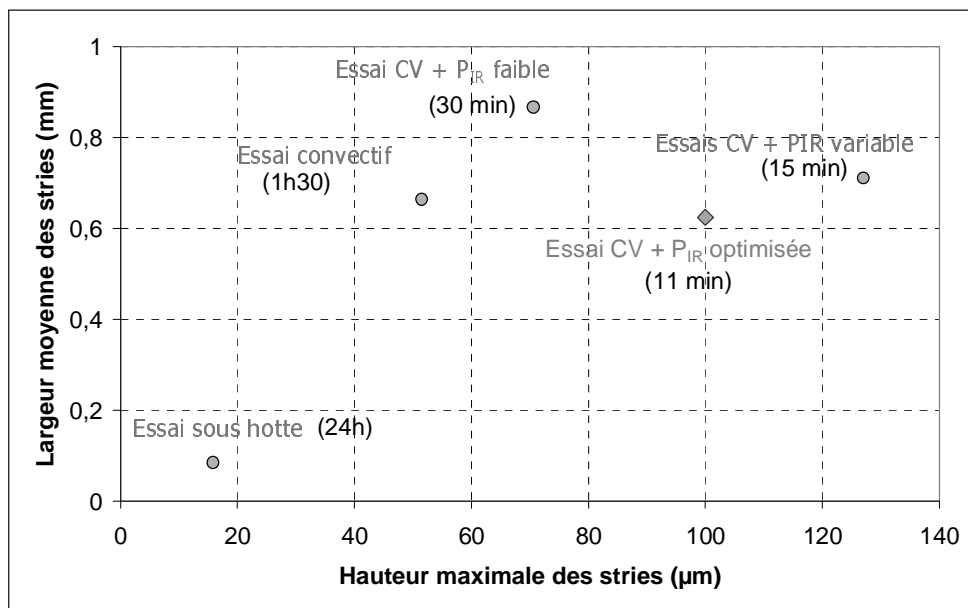


Figure AII – 3 : Evolution des teneurs en eau en surface et au fond